

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2002 年 10 月 10 日 (10.10.2002)

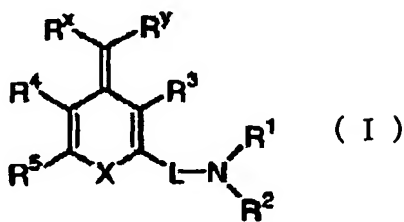
PCT

(10) 国際公開番号
WO 02/079343 A1

- (51) 国際特許分類⁷: C09K 11/06, H05B 33/14, 33/22 (74) 代理人: 小栗 昌平, 外(OGURI, Shohei et al.); 〒107-6028 東京都港区赤坂一丁目12番32号 アーク森ビル 28 階 栄光特許事務所 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP02/03101
- (22) 国際出願日: 2002 年 3 月 28 日 (28.03.2002) (81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2001-101027 2001 年 3 月 30 日 (30.03.2001) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 富士写真フイルム株式会社 (FUJI PHOTO FILM CO., LTD.) [JP/JP]; 〒250-0123 神奈川県 南足柄市中沼 210 番地 Kanagawa (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 新居 一巳 (NII, Kazumi) [JP/JP]; 〒250-0123 神奈川県 南足柄市中沼 210 番地 富士写真フイルム株式会社内 Kanagawa (JP). 岡田 久 (OKADA, Hisashi) [JP/JP]; 〒250-0123 神奈川県 南足柄市中沼 210 番地 富士写真フイルム株式会社内 Kanagawa (JP).
- (84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: LUMINESCENT ELEMENT

(54) 発明の名称: 発光素子



(57) Abstract: A luminescent element characterized by comprising a substrate, a pair of electrodes formed thereover, at least one luminescent layer which is disposed between the electrodes and comprises a luminescent material represented by the following general formula (I) and a host material, and an organic film which is disposed between the luminescent layer and the cathode so as to be in contact with the luminescent layer and has an ionization potential higher than that of the host material. (I) In the formula, R¹ to R⁵ each represents hydrogen or a substituent; X represents oxygen, sulfur, or N-RY1 (wherein RY1 represents hydrogen or a substituent); L represents a connecting group comprising a conjugated bond; and R^X and R^Y each represents hydrogen or a substituent, provided that at least one of R^X and R^Y represents an electron-attracting group. The compound represented by the general formula (I) may be in the form of a metal complex.

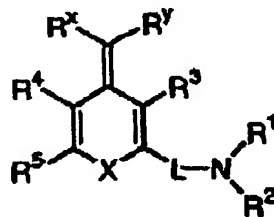
[続葉有]



(57) 要約:

基板上に設けた一对の電極間に少なくとも一つの下記一般式 (I) で表される発光材料とホスト材料からなる発光層を有し、該発光層に接し、該発光層と陰極の間にホスト材料のイオン化ポテンシャルより大きいイオン化ポテンシャルを有する有機膜を有することを特徴とする発光素子。

一般式 (I)



式中 R¹~5 は水素原子または置換基を表す。X は酸素原子、硫黄原子、N・R^{Y1}を表し、R^{Y1}は水素原子または置換基を表す。L は共役結合からなる連結基を表す。R^Xおよび R^Yは水素原子または置換基を表し、少なくとも一方は電子吸引性基を表す。また、一般式 (I) で表される化合物は金属錯体を形成したものでもよい。

明 細 書

発光素子

技術分野

本発明は、バックライト、フラットパネルディスプレイ、照明光源、表示素子、電子写真、有機半導体レーザー、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、光通信デバイスなどの分野に利用可能な発光素子に関するものである。

背景技術

今日、多様な発光素子の研究開発が活発に行われている。その中で有機電界発光 (EL) 素子は、超薄型・軽量性、高速応答性、広視野角性、低電圧駆動などの特長を有しており、有望な発光素子として注目されている。一般に有機EL素子は、発光層及び該層を挟んだ一对の対向電極から構成されており、陰極から注入された電子と陽極から注入された正孔が再結合し、生成した励起子からの発光を利用するものである。

現在、低電圧で高輝度に発光する有機EL素子はT a n gらにより示された積層構造を有するものである (アプライド フィジックス レターズ、51巻、913頁、1987年)。この素子は電子輸送兼発光材料と正孔輸送材料を積層させることにより高輝度の緑色発光を得ており、6～7Vの直流電圧で、輝度は数千cd/m²まで達している。しかし、フルカラーディスプレイ、光源としての利用を考えると、実用上は三原色あるいは白色発光が必要であるが、上記素子では発光材料として8-キノリノールのアルミニウム錯体を用いており、発光色は緑色に限られるため、他の発光色の発光素子の開発が望まれている。これまで緑色より長波側に発光するものとして4-(ジシアノメチレン)-2-メチル- (4-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン (DCM) やその誘導体、ナイルレッド誘導体、Eu (III) 錯体などの発光材料が開発されているが、色純度が悪い、発光輝度、発光効率が低い、耐久性が低いなどの問題があった。

そこで種々の検討を行ったところ、特開平11-335661号公報記載の化

化合物の様に環状酸性核を含有する化合物を用いた素子を作成評価したところ、赤色純度、発光輝度、発光効率および耐久性に優れることを見出した。

しかしながら、実施例記載の蒸着型素子のような陰極側の電子注入輸送層と発光層のホスト材料を同一化合物にした素子を作成した場合、パルス駆動において輝度の応答性が悪く、発光パルス幅の温度依存性が大きい。そのため、露光光源等に応用した場合、パルス変調による広範囲の階調作成性には不向きであり、パルス駆動時の応答性、特に発光パルス幅の温度依存性の改良が望まれていた。また、発光効率のさらなる向上が望まれていた。

発明の開示

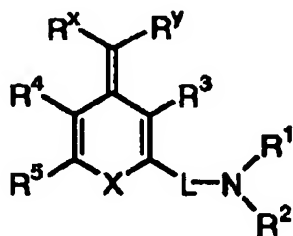
本発明の第一の目的は、パルス駆動時の応答性、特に発光パルス幅の温度依存性の小さい発光素子を提供することにある。

本発明の第二の目的は、赤色純度、発光効率および耐久性に優れた発光素子を提供することにある。

本発明の上記目的は、下記によって達成された。

1. 基板上に設けた一对の電極間に下記一般式 (I) で表される化合物から選択される少なくとも一つの発光材料とホスト材料とを含む発光層を有し、該発光層に接し、該発光層と陰極との間にホスト材料のイオン化ポテンシャルより大きいイオン化ポテンシャルを有する有機膜を有することを特徴とする発光素子。

一般式 (I)



式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 は、同一または異なって、水素原子または置換基を表す。Xは、酸素原子、硫黄原子、 $\text{N}-\text{R}^{\text{Y}1}$ を表し、 $\text{R}^{\text{Y}1}$ は水素原子または置換基を表す。Lは、共役結合からなる連結基を表す。 R^{X} および R^{Y}

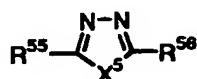
は、同一または異なって、水素原子または置換基を表し、少なくとも一方は電子吸引性基である。

2. 前記有機層のイオン化ポテンシャルと、発光層のホスト材料のイオン化ポテンシャルの差は0.01 eV以上2 eV以下であることを特徴とする上記1に記載の発光素子。

3. 前記有機膜のイオン化ポテンシャルは、5.7 eVより大きく7.0 eV以下であることを特徴とする上記1または2に記載の発光素子。

4. 前記有機膜が、一般式(V)ないし(XI)で表される化合物から選択される少なくとも1つの化合物からなることを特徴とする上記1ないし3のいずれかに記載の発光素子。

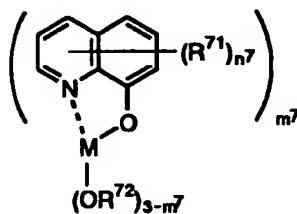
一般式 (V)



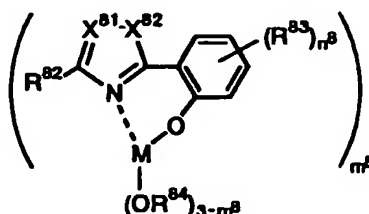
一般式 (VI)



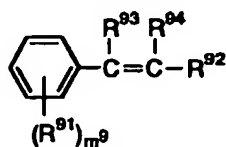
一般式 (VII)



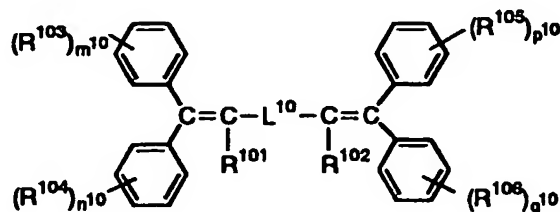
一般式 (VIII)



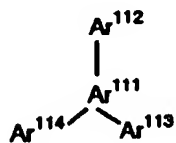
一般式 (IX)



一般式 (X)



一般式 (XI)



一般式 (V) 中、 R^{55} および R^{56} は、同一または異なって、アルキル基、アリール基、ヘテロ環基を表す。 X^5 は、酸素原子、硫黄原子、 $N-R^{Y5}$ を表し、 R^{Y5} は水素原子または置換基を表す。

一般式 (VI) 中、 A は二つ以上のヘテロ原子を含むヘテロ環基を表し、 A で表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。 m^6 は、2 以上の整数を表す。 L^6 は連結基を表す。

一般式 (VII) 中、 R^{71} は置換基を表す。 R^{72} は、水素原子、脂肪族基、アリール基、または芳香族ヘテロ環基を表す。 M は、金属原子を表す。 n^7 は、0 ~ 6 の整数を表す。 m^7 は、2 もしくは 3 を表す。ただし、 $m^7 = 3$ のとき $n^7 \neq 0$ である。

一般式 (VIII) 中、 X^{81} は、窒素原子または $C-R^{81}$ を表す。 X^{82} は、酸素原子、硫黄原子または $N-R^{Y8}$ を表す。 R^{81} 、 R^{82} 、 R^{83} 、 R^{Y8} は、同一または異なって、水素原子または置換基を表す。 R^{81} と R^{82} は連結して環を形成しても良い。 R^{84} は、水素原子、アルキル基、アリール基または芳香族ヘテロ環基を表す。 M は、金属原子を表す。 n^8 は、0 ないし 4 の整数を表し、 m^8 は 2 ないし 3 を表す。

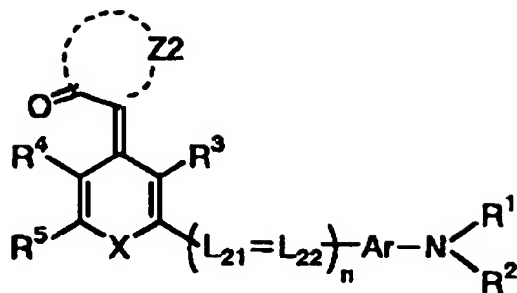
一般式 (IX) 中、 R^{91} は置換基を表す。複数の R^{91} は互いに連結して縮合環を形成しても良い。 R^{92} ないし R^{94} は、同一または異なって、水素原子または置換基を表す。 m^9 は、0 ないし 5 の整数を表す。

一般式 (X) 中、 R^{101} および R^{102} は、同一または異なって、水素原子または置換基を表し、 R^{103} ないし R^{106} は、同一または異なって、置換基を表す。 L^{10} は、連結基を表す。 m^{10} 、 n^{10} 、 p^{10} および q^{10} は、同一または異なって、0 ないし 5 の整数を表す。

一般式 (XI) 中、 Ar^{111} は 3 価のアリーレン基を表す。 Ar^{112} ないし Ar^{114} は、同一または異なって、アリール基を表す。

5. 一般式 (I) 記載の化合物が一般式 (II) で表される化合物であることを特徴とする上記 1 ないし 4 のいずれかに記載の発光素子。

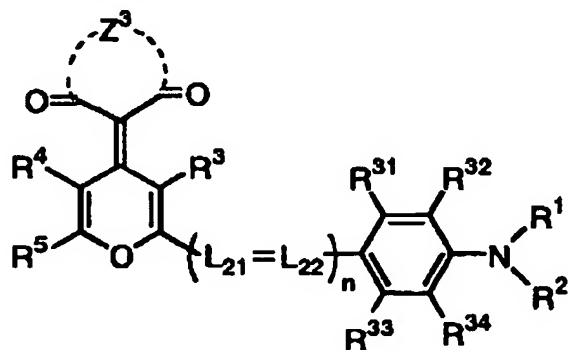
一般式 (II)



式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 は、同一または異なって、水素原子または置換基を表す。 X は、酸素原子、硫黄原子、 $N-R^{Y1}$ を表し、 R^{Y1} は水素原子または置換基を表す。 Z^2 は、5ないし6員環を形成するに必要な原子群を表す。 L_{21} および L_{22} は、同一または異なって、メチン基、置換メチン基または窒素原子を表す。 n は0ないし3の整数を表す。 Ar はアリーレン基または二価の芳香族ヘテロ環基を表す。

6. 一般式 (II) 記載の化合物が一般式 (III) で表される化合物であることを特徴とする上記5に記載の発光素子。

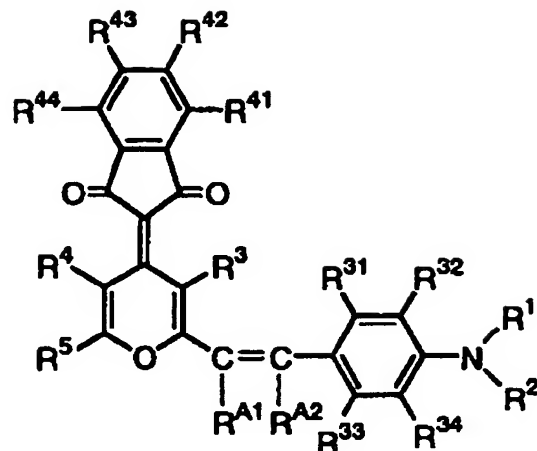
一般式 (III)



式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 及び R^{34} は、同一または異なって、水素原子または置換基を表す。 Z^3 は、5ないし6員環を形成するに必要な原子群を表す。 L_{21} および L_{22} は、同一または異なって、メチン基、置換メチン基または窒素原子を表す。 n は0ないし3の整数を表す。

7. 一般式 (III) 記載の化合物が一般式 (IV) で表される化合物であることを特徴とする上記6に記載の発光素子。

一般式 (IV)



式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} 、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} および R^{44} は、同一または異なって、水素原子または置換基を表す。 R^{A1} および R^{A2} は、同一または異なって、水素原子または置換基を表し、可能な場合には R^{A1} と R^{A2} とが連結して、さらにはその他の置換基と連結して環を形成してもよい。

8. ホスト材料が、アルミニウムキノリン誘導体であることを特徴とする上記1ないし7のいずれかに記載の発光素子。

9. 一般式 (I) ないし (IV) で表される化合物から選択される少なくとも一つの化合物の発光層における含有量が、0.01質量%以上50質量%以下であることを特徴とする上記1ないし8のいずれかに記載の発光素子。

10. 一般式 (V) ないし (XI) で表される化合物から選択される少なくとも一つの化合物の有機膜における含有量が、50質量%以上100質量%以下であることを特徴とする上記4ないし9のいずれかに記載の発光素子。

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明について詳細に説明する。

本発明の発光素子は、陽極及び陰極の両電極間に発光層もしくは発光層を含む複数の有機化合物層を形成した素子であり、発光層の他にホール注入層、ホール輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有しても良く、またこれらの各

層はそれぞれ他の機能を備えたものであっても良い。

まず、本発明の一般式 (I) で表される化合物について説明する。

R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 は、同一または互いに異なってもよく、それぞれ水素原子または置換基を表す。

$R^1 \sim R^5$ で表される置換基としては、例えばアルキル基（好ましくは炭素数 1～20、より好ましくは炭素数 1～12、特に好ましくは炭素数 1～8 であり、例えばメチル、エチル、*i*so-プロピル、*tert*-ブチル、*n*-オクチル、*n*-デシル、*n*-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。）、アルケニル基（好ましくは炭素数 2～20、より好ましくは炭素数 2～12、特に好ましくは炭素数 2～8 であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙げられる。）、アルキニル基（好ましくは炭素数 2～20、より好ましくは炭素数 2～12、特に好ましくは炭素数 2～8 であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニル等が挙げられる。）、アリール基（好ましくは炭素数 6～30、より好ましくは炭素数 6～20、特に好ましくは炭素数 6～12 であり、例えばフェニル、*p*-メチルフェニル、ナフチル、アントリル、フェナントリル、ピレニル等が挙げられる。）、アミノ基（好ましくは炭素数 0～20、より好ましくは炭素数 0～12、特に好ましくは炭素数 0～6 であり、例えばアミノ、メチルアミノ、ジメチルアミノ、ジエチルアミノ、ジフェニルアミノ、ジベンジルアミノ等が挙げられる。）、アルコキシ基（好ましくは炭素数 1～20、より好ましくは炭素数 1～12、特に好ましくは炭素数 1～8 であり、例えばメトキシ、エトキシ、ブトキシ等が挙げられる。）、アリールオキシ基（好ましくは炭素数 6～20、より好ましくは炭素数 6～16、特に好ましくは炭素数 6～12 であり、例えばフェニルオキシ、2-ナフチルオキシ等が挙げられる。）、ヘテロ環オキシ基（好ましくは炭素数 2～20、より好ましくは炭素数 3～16、特に好ましくは炭素数 4～12 であり、例えばピリジノオキシ、ピリミジノオキシ、ピリダジノオキシ、ベンズイミダゾリルオキシ等が挙げられる。）、シリルオキシ基（好ましくは炭素数 3～40、より好ましくは炭素数 3～30、特に好ましくは炭素数 3～20 であり、例えばトリメチルシリルオキシ、*t*-ブチルジメチルオキシ等が挙げられる。）、アシル基（好

ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ヒバロイル等が挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～16、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニル等が挙げられる。)、アリーロキシカルボニル基(好ましくは炭素数7～20、より好ましくは炭素数7～16、特に好ましくは炭素数7～10であり、例えばフェニロキシカルボニルなどが挙げられる。)、アシルオキシ基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～16、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばアセトキシ、ベンゾイルオキシ等が挙げられる。)、アシルアミノ基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～16、特に好ましくは炭素数2～10であり、例えばアセチルアミノ、ベンゾイルアミノ等が挙げられる。)、アルコキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～16、特に好ましくは炭素数2～12であり、例えばメトキシカルボニルアミノ等が挙げられる。)、アリーロキシカルボニルアミノ基(好ましくは炭素数7～20、より好ましくは炭素数7～16、特に好ましくは炭素数7～12であり、例えばフェニロキシカルボニルアミノ等が挙げられる。)、スルホニルアミノ基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメタンスルホニルアミノ、ベンゼンスルホニルアミノ等が挙げられる。)、スルファモイル基(好ましくは炭素数0～20、より好ましくは炭素数0～16、特に好ましくは炭素数0～12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイル等が挙げられる。)、カルバモイル基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイル等が挙げられる。)、アルキルチオ基(好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～16、特に好ましくは炭素数1～12であり、例えばメチルチオ、エチルチオ等が挙げられる。)、アリールチオ基(好ましくは炭素数6～20、より好ましくは炭素数6～16、特に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニルチ

オ等が挙げられる。)、ヘテロ環チオ基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数3~16、特に好ましくは炭素数4~12であり、例えばピリジノチオ、ピリミジノチオ、ピリダジノチオ、ベンズイミダゾリルチオ、チアジアゾリルチオ等が挙げられる。)、スルホニル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメシル、トシル等が挙げられる。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニル等が挙げられる。)、ウレイド基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばウレイド、メチルウレイド、フェニルウレイド等が挙げられる。)、リン酸アミド基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばジエチルリン酸アミド、フェニルリン酸アミド等が挙げられる。)、ヒドロキシ基、メルカプト基、ハロゲン原子(例えばフッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子)、シアノ基、スルホ基、カルボキシ基、ニトロ基、ヒドロキサム酸基、スルフィノ基、ヒドラジノ基、イミノ基、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~30、より好ましくは炭素数1~12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子を含むものであり、具体的には、例えばイミダゾリル、ピリジル、キノリル、フリル、チエニル、ピペリジル、モルホリノ、ベンゾオキサゾリル、ベンゾイミダゾリル、ベンゾチアゾリル、カルバゾリル、アゼビニル等が挙げられる。)、シリル基(好ましくは炭素数3~40、より好ましくは炭素数3~30、特に好ましくは炭素数3~24であり、例えばトリメチルシリル、トリフェニルシリル等が挙げられる。)等が挙げられる。これらの置換基は更に置換されても良い。また置換基が二つ以上ある場合は、同一でも異なっても良い。また、可能な場合には互いに連結して環を形成していても良い。

R^1 、 R^2 として、好ましくは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、ヘテロ環基、Lとアルキレン基で連結して5または6員環を形成したもの、 R^1 と R^2 が連結して5ないし7員環を形成したものであり、より好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、Lとアルキレン基で連結して5または6員環を形成

したもの、 R^1 と R^2 が連結して5ないし7員環を形成したものであり、更に好ましくは炭素数1～5のアルキル基、Lとアルキレン基で連結して5または6員環を形成したもの、 R^1 と R^2 が連結して5ないし7員環を形成したものであり、特に好ましくはメチル基、エチル基、Lとアルキレン基で連結して5または6員環を形成したもの、 R^1 と R^2 が連結して5ないし7員環を形成したものである。

R^3 として、好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、ハロゲン原子、シアノ基であり、より好ましくは水素原子、アルキル基であり、さらに好ましくは水素原子である。

R^4 として、好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、 R^5 と連結して環を形成したものであり、より好ましくは水素原子、アルキル基であり、更に好ましくは水素原子である。

R^5 として、好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、 R^4 と連結して環を形成したものであり、より好ましくはアルキル基（好ましくは炭素数2～20のアルキル基、より好ましくは炭素数3～20の分岐または環状アルキル基、更に好ましくは炭素数4～12の3級炭素を持つ分岐または環状アルキル基、特に好ましくはtert-ブチル基である。）、アリール基（好ましくはo-位に置換基のあるアリール基、より好ましくは炭素数～30のo-位に置換基のあるアルキル置換フェニル基、更に好ましくは2, 6-ジメチル置換フェニル基、特に好ましくは2, 4, 6-トリメチルフェニル基である。）であり、特に好ましくはtert-ブチル基、2, 4, 6-トリメチルフェニル基であり、最も好ましくはtert-ブチル基である。

Xは、酸素原子、硫黄原子、 $N-R^{Y1}$ を表し、 R^{Y1} は、水素原子または置換基を表す。 R^{Y1} で表される置換基としては、例えばアルキル基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、特に好ましくは炭素数1～8であり、例えばメチル、エチル、iso-プロピル、tert-ブチル、n-オクチル、n-デシル、n-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシルなどが挙げられる。）、アルケニル基（好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～12、特に好ましくは炭素数2～8であり、例えばビ

ニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニルなどが挙げられる。)、アルキニル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~12、特に好ましくは炭素数2~8であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニルなどが挙げられる。)、アリール基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、特に好ましくは炭素数6~12であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナフチルなどが挙げられる。)、アシル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばアセチル、ベンゾイル、ホルミル、ピバロイルなどが挙げられる。)、アルコキシカルボニル基(好ましくは炭素数2~20、より好ましくは炭素数2~16、特に好ましくは炭素数2~12であり、例えばメトキシカルボニル、エトキシカルボニルなどが挙げられる。)、アリーロキシカルボニル基(好ましくは炭素数7~20、より好ましくは炭素数7~16、特に好ましくは炭素数7~10であり、例えばフェニロキシカルボニルなどが挙げられる。)、スルファモイル基(好ましくは炭素数0~20、より好ましくは炭素数0~16、特に好ましくは炭素数0~12であり、例えばスルファモイル、メチルスルファモイル、ジメチルスルファモイル、フェニルスルファモイルなどが挙げられる。)、カルバモイル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばカルバモイル、メチルカルバモイル、ジエチルカルバモイル、フェニルカルバモイルなどが挙げられる。)、スルホニル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメシル、トシルなどが挙げられる。)、スルフィニル基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~16、特に好ましくは炭素数1~12であり、例えばメタンスルフィニル、ベンゼンスルフィニルなどが挙げられる。)、ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12であり、ヘテロ原子としては、例えば窒素原子、酸素原子、硫黄原子、具体的には例えばイミダゾリル、ピリジル、フリル、ピペリジル、モルホリノ、ベンズオキサゾリル、ベンズイミダゾリル、ベンズチアゾリルなどが挙げられる。)などが挙げられる。これらの置換基は更に置換されてもよい。また、置換基が二つ以上ある場合は、同じでも異なってもよい。また、可能な場合に

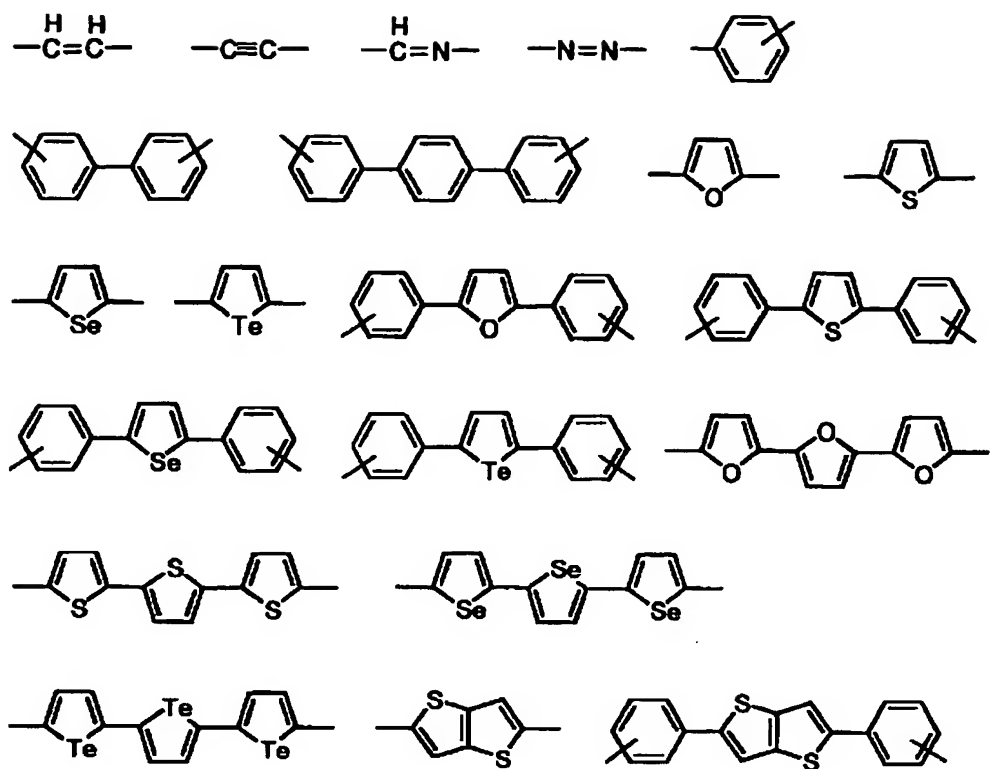
は連結して環を形成してもよい。

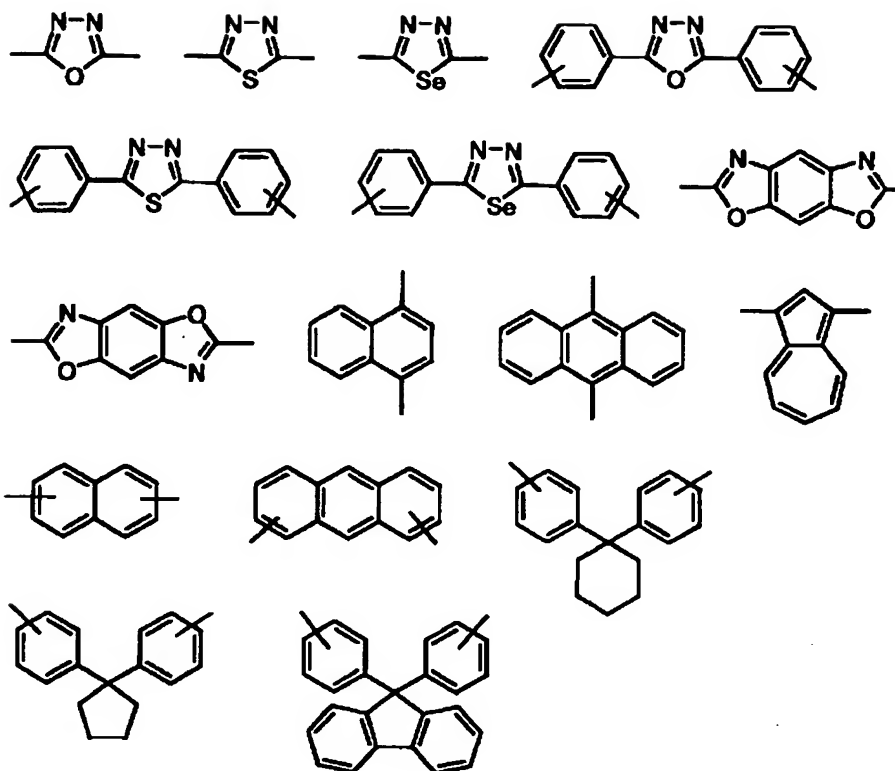
R^{Y1} で表される置換基として、好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、ヘテロ環基であり、より好ましくは、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基である。

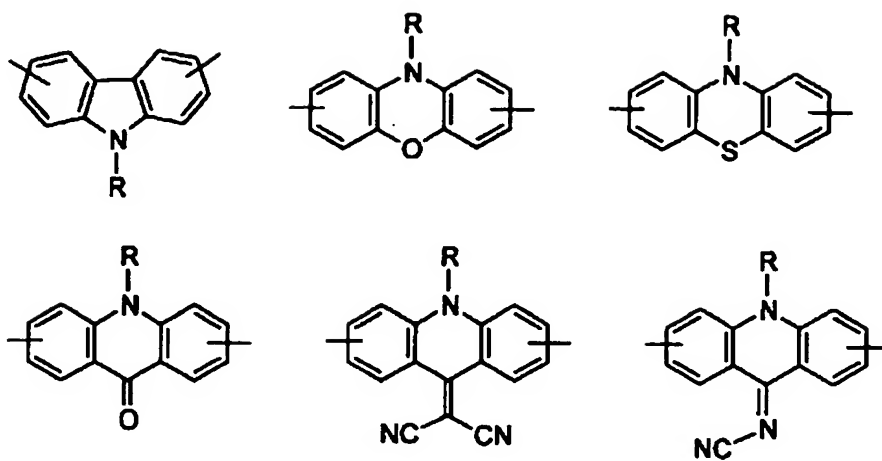
Xとして、好ましくは酸素原子、 $N-R^{Y1}$ であり、より好ましくは酸素原子である。

Lは共役結合の連結基を表す。Lで表される連結基として好ましくは、C、N、O、S、Se、Te、Si、Geなどで形成される共役結合性連結基であり、より好ましくはアルケニレン、アルキニレン、アリーレン、二価の芳香族ヘテロ環（好ましくはアジン、アゾール、チオフェン、フラン環から形成される芳香族ヘテロ環である。）およびNとこれらの組み合わせから成る基であり、更に好ましくはアルケニレン、アリーレン、二価の芳香族ヘテロ環およびNとこれらの組み合わせから成る基であり、特に好ましくはアルケニレンと炭素数6～30のアリーレン、炭素数2～30の二価の芳香族ヘテロ環の組合せから成る基であり、最も好ましくはアルケニレンと炭素数6～30のアリーレンとの組合せから成る基である。

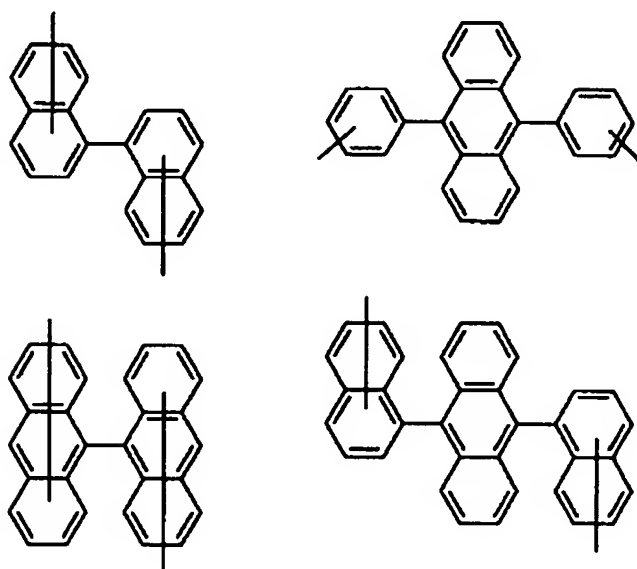
Lで表される連結基の具体例としては、例えば以下のものが挙げられる。

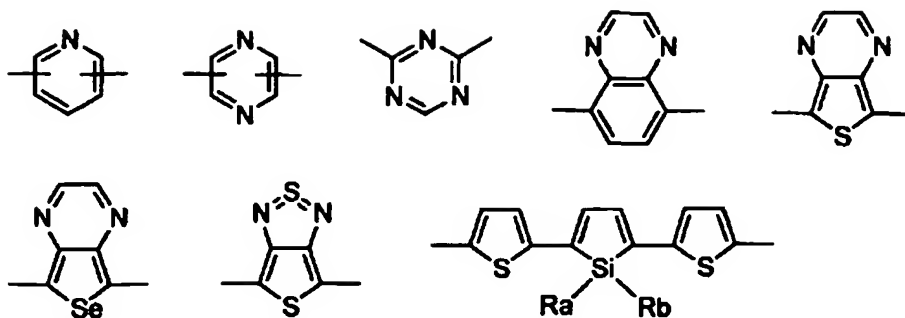




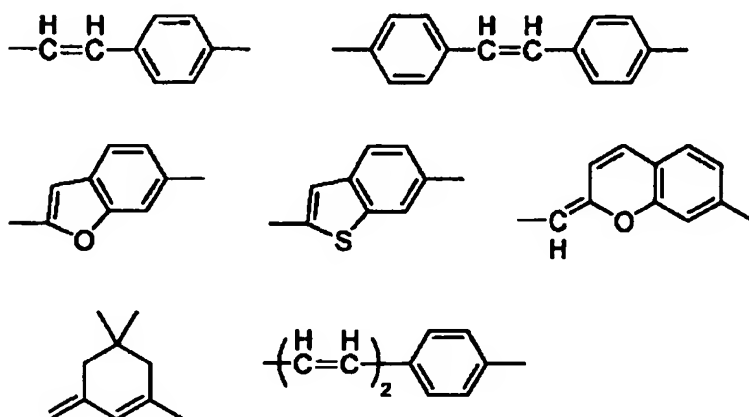


Rは水素原子、脂肪族炭化水素基、アリール基、ヘテロ環基を表す。





R a、R bは脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基を表す。



Lで表される連結基は置換基を有していてもよく、置換基としては、例えばR¹～R⁵で表される置換基として挙げたものが適用できる。Lの置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基、であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族ヘテロ環基である。

R^xおよびR^yは、それぞれ同一または互いに異なってもよく、水素原子または置換基を表し、少なくとも一方は電子吸引性基を表す。また、R^xとR^yは連結して環を形成してもよい。

R^x、R^yで表される置換基としては、例えばR¹～R⁵の置換基として挙げた

ものが適用できる。 R^X 、 R^Y で表される置換基として好ましくは、アルキル基、アルケニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、カルボニル基、チオカルボニル基、オキシカルボニル基、アシルアミノ基、カルバモイル基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、スルホニル基、スルフィニル基、ホスホリル基、イミノ基、シアノ基、ハロゲン原子、シリル基、芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくはHammettの σ_p 値が0.2以上の電子吸引性基であり、更に好ましくはアリール基、芳香族ヘテロ環基、シアノ基、カルボニル基、チオカルボニル基、オキシカルボニル基、カルバモイル基、スルファモイル基、スルホニル基、イミノ基、ハロゲン原子および R^X と R^Y が連結して電子吸引性基の環を形成したものであり、特に好ましくは芳香族ヘテロ環基、カルボニル基、シアノ基、イミノ基、 R^X と R^Y が連結して電子吸引性基の環を形成したものであり、最も好ましくはシアノ基、 R^X と R^Y が連結して電子吸引性基の環を形成したものであり、中でも R^X と R^Y が連結して電子吸引性基の環を形成したものが好ましい。

R^X と R^Y が連結し、これらが結合した炭素原子と共に形成した環としては、通常メロシアニン色素で酸性核として用いられるものが好ましく、その具体例としては例えば以下のものが挙げられる。

(a) 1,3-ジカルボニル核：例えば1,3-インダンジオン核、1,3-シクロヘキサジオン、5,5-ジメチル-1,3-シクロヘキサジオン、1,3-ジオキササン-4,6-ジオンなど。

(b) ピラゾリノン核：例えば1-フェニル-2-ピラゾリン-5-オン、3-メチル-1-フェニル-2-ピラゾリン-5-オン、1-(2-ベンゾチアゾイル)-3-メチル-2-ピラゾリン-5-オンなど。

(c) イソオキサゾリノン核：例えば3-フェニル-2-イソオキサゾリン-5-オン、3-メチル-2-イソオキサゾリン-5-オンなど。

(d) オキシインドール核：例えば1-アルキル-2,3-ジヒドロ-2-オキシインドールなど。

(e) 2,4,6-トリケトヘキサヒドロピリミジン核：例えばバルビツル酸または2-チオバルビツル酸およびその誘導体など。誘導体としては例えば1-メ

チル、1-エチル等の1-アルキル体、1,3-ジメチル、1,3-ジエチル、1,3-ジブチル等の1,3-ジアルキル体、1,3-ジフェニル、1,3-ジ(p-クロロフェニル)、1,3-ジ(p-エトキシカルボニルフェニル)等の1,3-ジアリール体、1-エチル-3-フェニル等の1-アルキル-1-アリール体、1,3-ジ(2-ピリジル)等の1,3位ジヘテロ環置換体等が挙げられる。

(f) 2-チオ-2,4-チアゾリジンジオン核：例えばローダニンおよびその誘導体など。誘導体としては例えば3-メチルローダニン、3-エチルローダニン、3-アリルローダニン等の3-アルキルローダニン、3-フェニルローダニン等の3-アリールローダニン、3-(2-ピリジル)ローダニン等の3位ヘテロ環置換ローダニン等が挙げられる。

(g) 2-チオ-2,4-オキサゾリジンジオン(2-チオ-2,4-(3H,5H)-オキサゾールジオン核：例えば3-エチル-2-チオ-2,4-オキサゾリジンジオンなど。

(h) チアナフテノン核：例えば3(2H)-チアナフテノン-1,1-ジオキサイドなど。

(i) 2-チオ-2,5-チオゾリジンジオン核：例えば3-エチル-2-チオ-2,5-チアゾリジンジオンなど。

(j) 2,4-チオゾリジンジオン核：例えば2,4-チアゾリジンジオン、3-エチル-2,4-チアゾリジンジオン、3-フェニル-2,4-チアゾリジンジオンなど。

(k) チアゾリン-4-オン核：例えば4-チアゾリノン、2-エチル-4-チアゾリノンなど。

(l) 4-チアゾリジノン核：例えば2-エチルメルカプト-5-チアゾリン-4-オン、2-アルキルフェニルアミノ-5-チアゾリン-4-オンなど。

(m) 2,4-イミダゾリジンジオン(ヒダントイン)核：例えば2,4-イミダゾリジンジオン、3-エチル-2,4-イミダゾリジンジオンなど。

(n) 2-チオ-2,4-イミダゾリジンジオン(2-チオヒダントイン)核：例えば2-チオ-2,4-イミダゾリジンジオン、3-エチル-2-チオ-2,

4-イミダゾリジンジオンなど。

(o) イミダゾリン-5-オン核：例えば2-プロピルメルカプト-2-イミダゾリン-5-オンなど。

(p) 3, 5-ピラゾリジンジオン核：例えば1, 2-ジフェニル-3, 5-ピラゾリジンジオン、1, 2-ジメチル-3, 5-ピラゾリジンジオンなど。

R^x 、 R^y およびそれらが結合する炭素原子で形成される環として、好ましくは1, 3-ジカルボニル核、ピラゾリノン核、2, 4, 6-トリケトヘキサヒドロピリミジン核（チオケトン体も含む）、2-チオ-2, 4-チアゾリジンジオン核、2-チオ-2, 4-オキサゾリジンジオン核、2-チオ-2, 5-チアゾリジンジオン核、2, 4-チアゾリジンジオン核、2, 4-イミダゾリジンジオン核、2-チオ-2, 4-イミダゾリジンジオン核、2-イミダゾリン-5-オン核、3, 5-ピラゾリジンジオン核であり、更に好ましくは1, 3-ジカルボニル核、2, 4, 6-トリケトヘキサヒドロピリミジン核（チオケトン体も含む）、3, 5-ピラゾリジンジオン核であり、特に好ましくは1, 3-ジカルボニル核、2, 4, 6-トリケトヘキサヒドロピリミジン核（チオケトン体も含む）であり、最も好ましくは1, 3-インダンジオン核である。

一般式（I）で表される化合物のうち、好ましくは一般式（II）で表される化合物である。

式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 およびXは、それぞれ一般式（I）におけるそれらと同義であり、また、好ましい範囲も同様である。 Z^2 は5ないし6員環を形成するに必要な原子群を表す。

Z^2 で形成される環として好ましくは1, 3-ジカルボニル核、ピラゾリノン核、2, 4, 6-トリケトヘキサヒドロピリミジン核（チオケトン体も含む）、2-チオ-2, 4-チアゾリジンジオン核、2-チオ-2, 4-オキサゾリジンジオン核、2-チオ-2, 5-チアゾリジンジオン核、2, 4-チアゾリジンジオン核、2, 4-イミダゾリジンジオン核、2-チオ-2, 4-イミダゾリジンジオン核、2-イミダゾリン-5-オン核、1, 3-ピラゾリジンジオン核であり、より好ましくは1, 3-ジカルボニル核、2, 4, 6-トリケトヘキサヒドロピリミジン核（チオケトン体も含む）であり、更に好ましくは1, 3-ジカル

ボニル核、バルビツル酸誘導体、2-チオバルビツル酸誘導体であり、特に好ましくは1,3-ジカルボニル核(1,3-ジカルボニル核として好ましくは1,3-インダンジオン核である。)である。

Z^2 で形成される環は置換基を有してもよく、置換基としては例えば R^1 、 R^2 の置換基として挙げたものが適用できる。

L_{21} および L_{22} は、同一または互いに異なってもよく、それぞれメチン基、置換メチン基または窒素原子を表し、また置換メチン基の置換基を介して L_{21} もしくは L_{22} 同士で、または L_{21} と L_{22} は連結して4ないし6員環を形成してもよい。更に可能な場合には L_{21} 、 L_{22} は、 Ar 、 R_3 と連結して環を形成してもよい。

置換メチン基の置換基としては、例えば $R^1 \sim R^5$ で表される置換基として挙げたものが適用でき、好ましくはアルキル基、アリール基、アラルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、シアノ基、ハロゲン原子であり、より好ましくはアルキル基、アルコキシ基であり、更に好ましくは低級アルキル基(好ましくは炭素数1~4)である。

L_{21} および L_{22} として、好ましくは無置換メチン基、アルキル置換メチン基、アルコキシ置換メチン基であり、より好ましくは無置換メチン基、または L_{22} が置換基を介して Ar と5または6員環を形成したものであり、更に好ましくは無置換メチン基である。

n は0ないし3の整数を表し、好ましくは0、1または2であり、より好ましくは0または1であり、更に好ましくは1である。

Ar は、アリーレン基または二価の芳香族ヘテロ環基を表す。 Ar で表されるアリーレンまたは二価の芳香族ヘテロ環基は置換基を有していてもよく、置換基としては例えば $R^1 \sim R^5$ の置換基として挙げたものが適用できる。 Ar の置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基、シリル基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基

、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくは炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基である。

一般式(II)で表される化合物のうち、より好ましくは一般式(III)で表される化合物である。

式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また、好ましい範囲も同様である。 L_{21} 、 L_{22} および n は、それぞれ一般式(II)におけるそれらと同義であり、また、好ましい範囲も同様である。 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} および R^{34} は、それぞれ水素原子または置換基を表す。 R^{31} から R^{34} で表される置換基としては、例えば $R^1 \sim R^5$ の置換基として挙げたものが適応できる。 Z^3 は5ないし6員環を形成するに必要な原子群を表す。 Z^3 で形成される環としては、例えば一般式(II)における Z^2 で形成される環のうち、1,3-ジカルボニル構造を環内に持つものであり、例えば1,3-シクロペンタンジオン、1,3-シクロヘキサンジオン、1,3-インダンジオン、3,5-ピラゾリジンジオンなどが挙げられ、好ましくは1,3-インダンジオン、3,5-ピラゾリジンジオンであり、より好ましくは1,3-インダンジオン、1,2-ジアリール-3,5-ピラゾリジンジオンであり、更に好ましくは1,3-インダンジオン、1,2-ジフェニル-3,5-ピラゾリジンジオンであり、特に好ましくは1,3-インダンジオンである。

Z^3 で形成される環は置換基を有してもよく、置換基としては例えば $R^1 \sim R^5$ の置換基として挙げたものが適用できる。

一般式(III)で表される化合物のうち、更に好ましくは下記一般式(IV)で表される化合物である。

式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^6 は、それぞれ一般式(I)におけるそれらと同義であり、また、好ましい範囲も同様である。 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} および R^{34} は一般式(III)におけるそれらと同義であり、また、好ましい範囲も同様である。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} および R^{44} は、それぞれ水素原子または置換基を表す。 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} および R^{44} で表される置換基としては、例えば一般式(I)における $R^1 \sim R^5$ で表される置換基として挙げたものが適用できる。また、 R^{41} 、 R^{42} 、 R^{43} 、 R^{44} は、それぞれ可能な場合には連結して環を形成し

てもよい。 $R^{41} \sim R^{44}$ として、好ましくは水素原子、アルキル基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、更に好ましくは炭素数1～8がある。）、アリール基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、更に好ましくは炭素数6～12がある。）、ヘテロ環基（好ましくは炭素数2～30、より好ましくは炭素数2～20、更に好ましくは炭素数2～12がある。）、ハロゲン原子、シアノ基、アルコキシ基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、更に好ましくは炭素数1～8がある。）、アリールオキシ基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、更に好ましくは炭素数6～12がある。）、アルコキシカルボニル基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、更に好ましくは炭素数1～8がある。）、アリールオキシカルボニル基（好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、更に好ましくは炭素数6～12がある。）、 R^{42} と R^{43} が連結してベンゼン環または芳香族アゾール環を形成したものであり、より好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、ヘテロ環基、ハロゲン原子、シアノ基、 R^{42} と R^{43} が連結してベンゼン環を形成したものであり、更に好ましくは水素原子、フッ素原子、塩素原子、 R^{42} と R^{43} が連結してベンゼン環を形成したものであり、特に好ましくは水素原子である。

R^{A1} および R^{A2} は、それぞれ水素原子または置換基を表し、可能な場合には R^{A1} と R^{A2} とが連結してまたはこれらとその他の置換基とが連結して環を形成してもよい。 R^{A1} 、 R^{A2} で表される置換基としては、例えば一般式（I）における $R^1 \sim R^6$ で表される置換基として挙げたものが適用できる。 R^{A1} 、 R^{A2} として好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、アラルキル基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アルキルチオ基、アリールチオ基、シアノ基、ハロゲン原子であり、より好ましくはアルキル基、アルコキシ基であり、更に好ましくは低級アルキル基（好ましくは炭素数1～4）である。

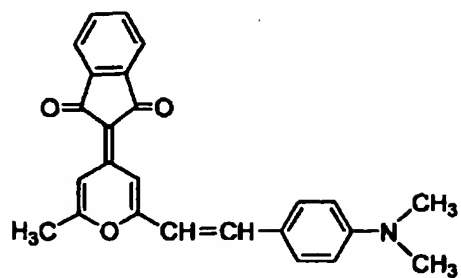
また、一般式（I）で表される化合物は低分子であっても良いし、残基がポリマー主鎖に接続された高分子量化合物（好ましくは質量平均分子量1000～5000000、より好ましくは5000～2000000、更に好ましくは10000～1000000）もしくは、一般式（I）で表される化合物を主鎖に持

つ高分子量化合物（好ましくは質量平均分子量1000～5000000、より好ましくは5000～2000000、更に好ましくは10000～1000000）であっても良い。高分子量化合物の場合はホモポリマーであっても良いし、他のポリマーとの共重合体であっても良く、共重合体である場合はランダム共重合体であっても、ブロック共重合体であっても良い。本発明で用いる化合物としては、好ましくは低分子量化合物である。

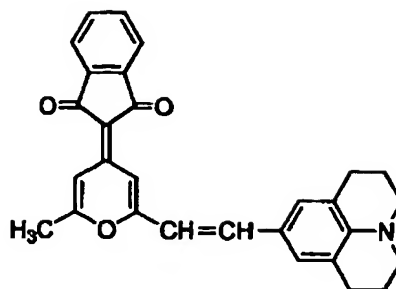
また、一般式（I）で表される化合物は、金属キレートを形成した状態で含有されてもよい。

本発明の一般式（I）で表される化合物の具体例としては例えば特開平11-292875号、特開平11-335661号、特開平11-335368号、特願平11-161130号、特願平11-264380号、特願2001-16980号等に記載ものが挙げられ、より好ましくは下記の具体例が挙げられるが、本発明はこれらに限定されるものではない。

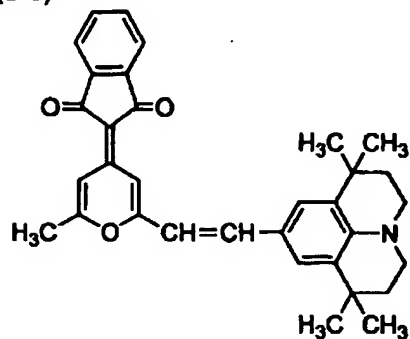
(D-1)



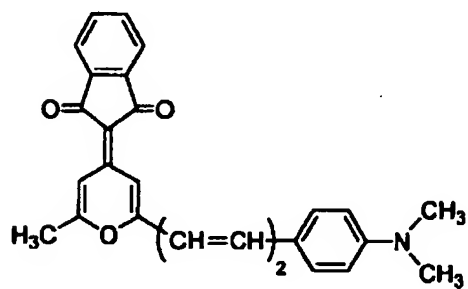
(D-2)



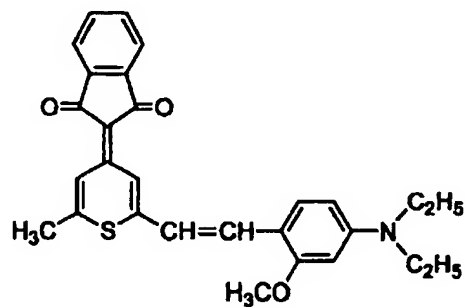
(D-3)



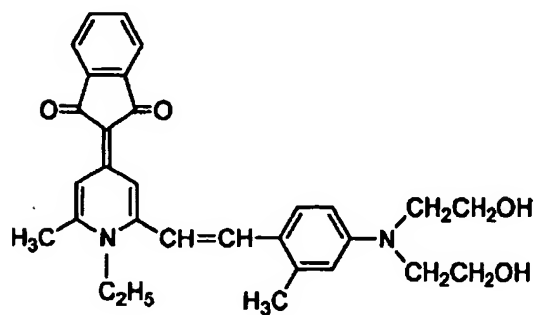
(D-4)



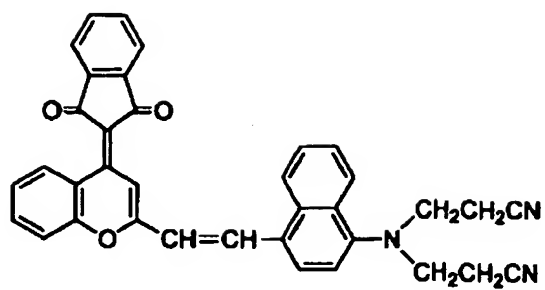
(D-5)



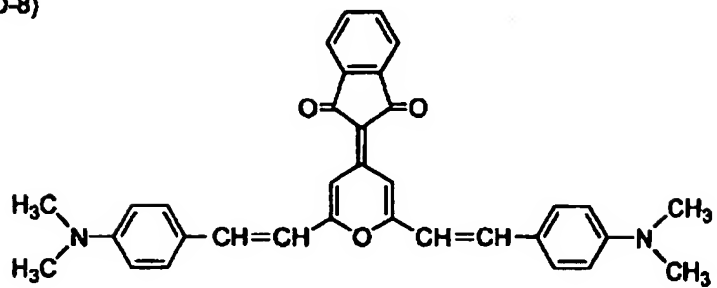
(D-6)



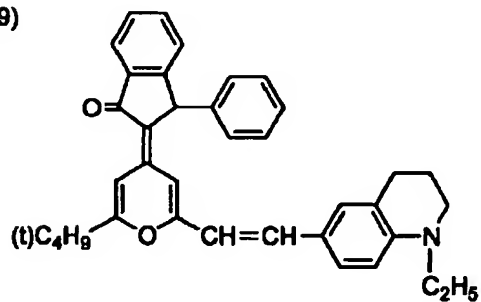
(D-7)



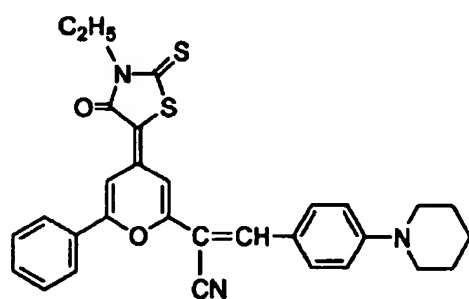
(D-8)



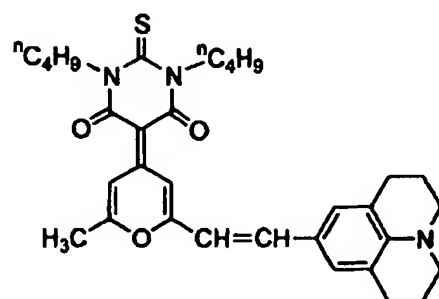
(D-9)



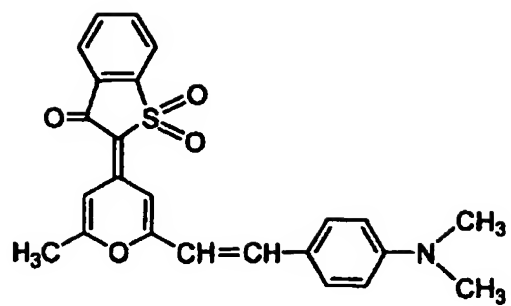
(D-10)



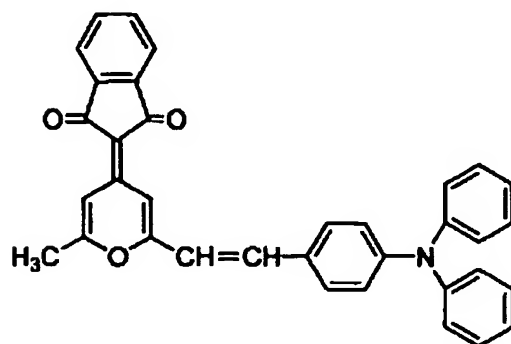
(D-11)



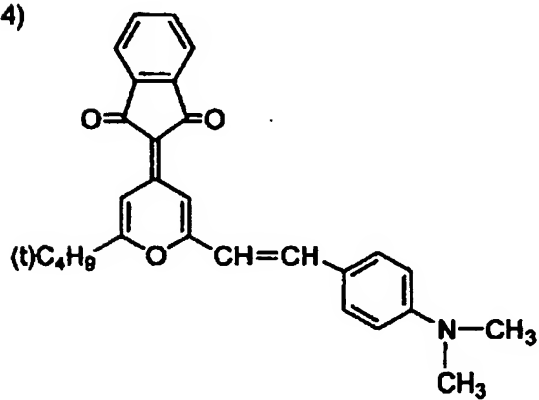
(D-12)



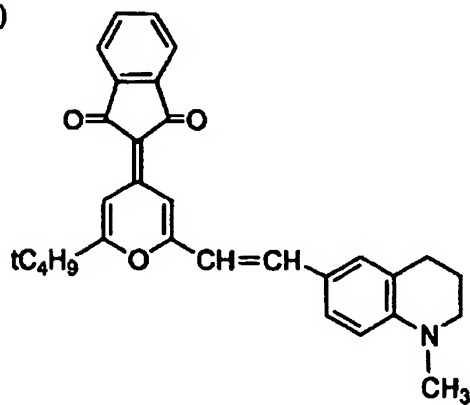
(D-13)



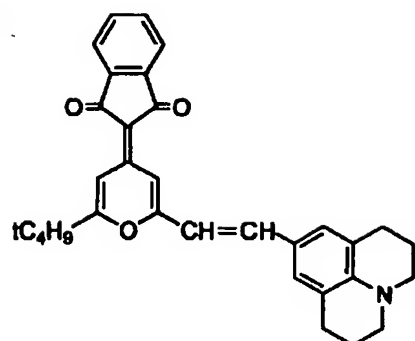
(D-14)



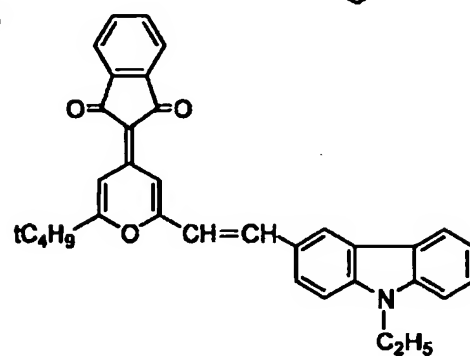
(D-15)



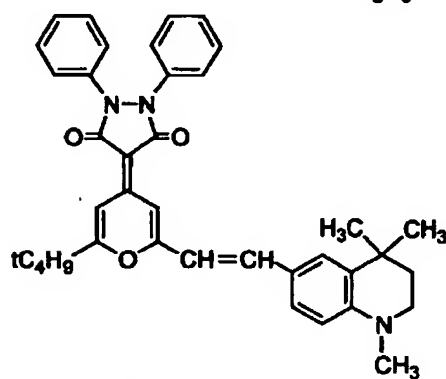
(D-16)



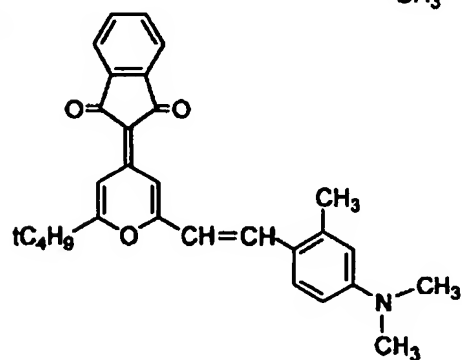
(D-17)



(D-18)



(D-19)

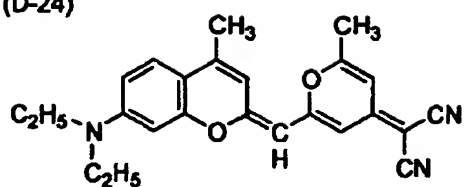


CCN(CC)c1ccc(cc1)/C=C/c2cc(OC(C)(C)C)cc3c2C(=O)c4ccccc4C3=O

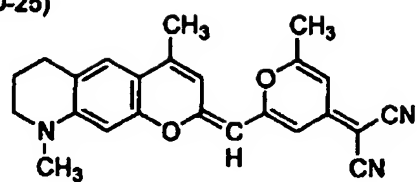
質量平均分子量(12000※リシレン換算)
x:y=(1:100)(質量比)

CN(C)Cc1ccc(cc1)/C=C/c2cc(OC(=O)c3ccccc3)c(C)c2C4=CC=C(C)C=C4CCCCCc1cc(OC(=O)c2ccccc2)c(C=Cc3cc4cc(N(CC)CC)ccc4o3)cc1

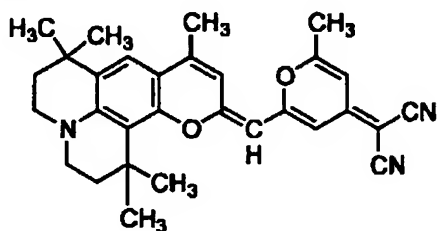
(D-24)



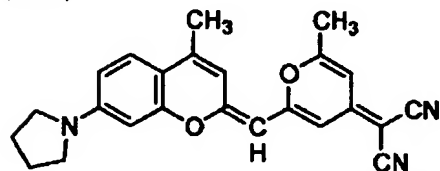
(D-25)



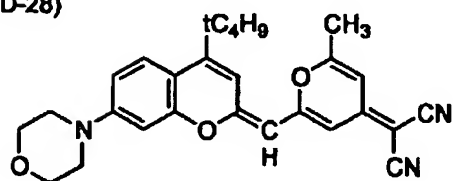
(D-26)



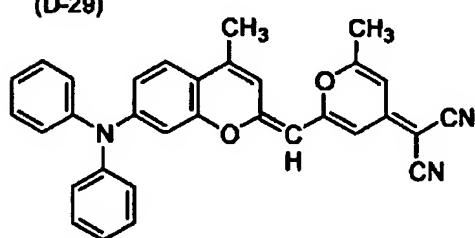
(D-27)



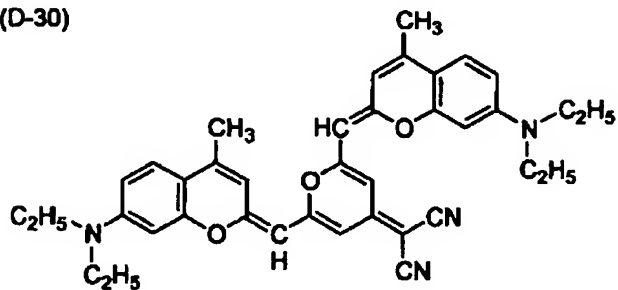
(D-28)



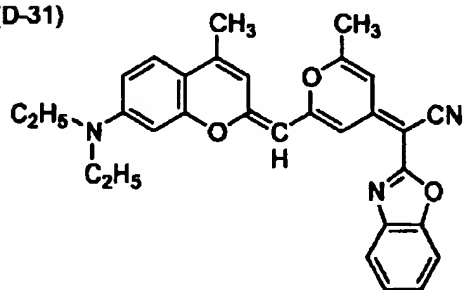
(D-29)



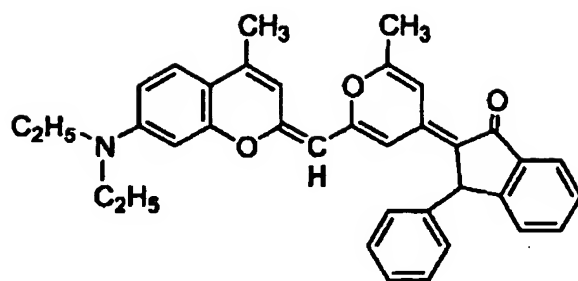
(D-30)



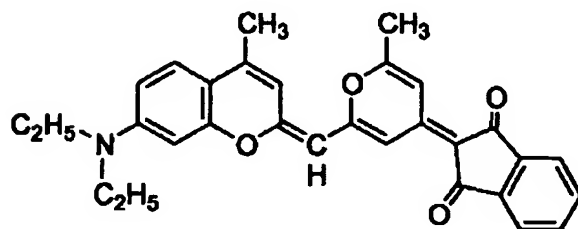
(D-31)



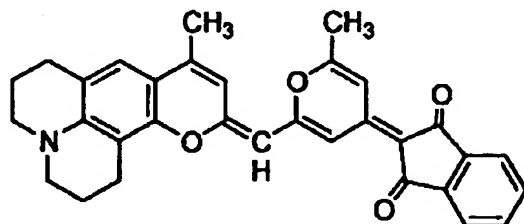
(D-32)



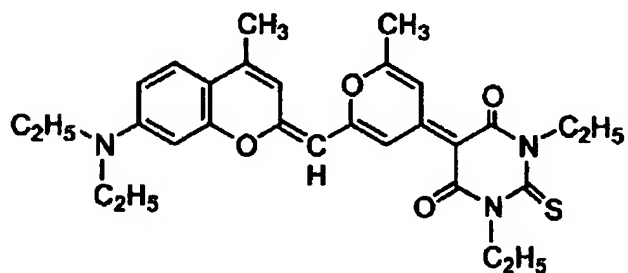
(D-33)



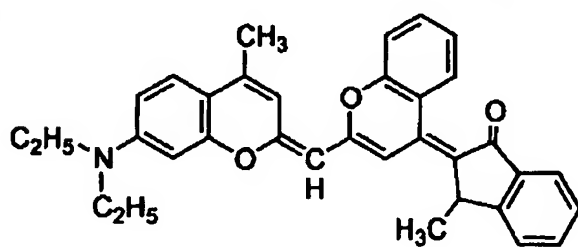
(D-34)



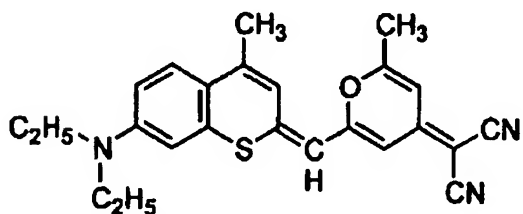
(D-35)



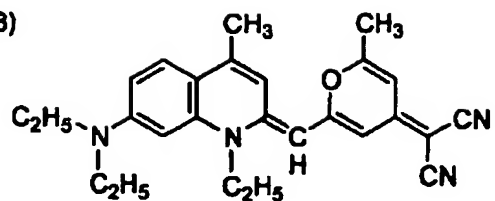
(D-36)



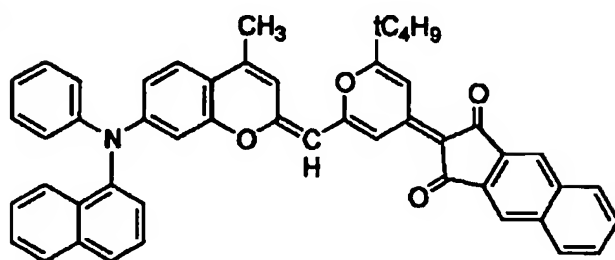
(D-37)



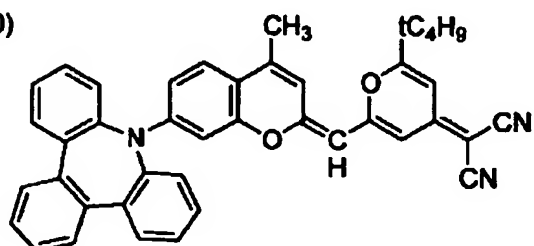
(D-38)



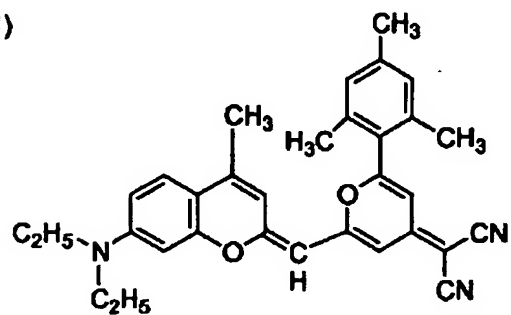
(D-39)



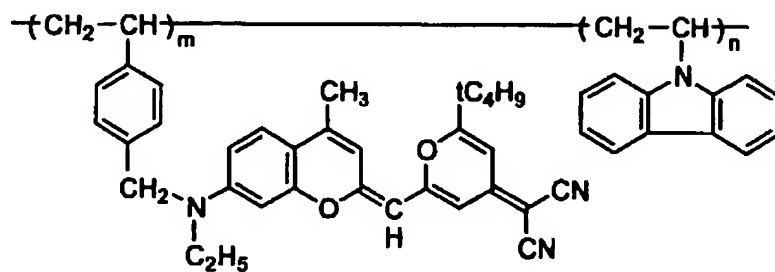
(D-40)



(D-41)



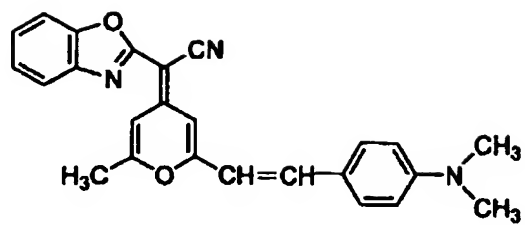
(D-42)



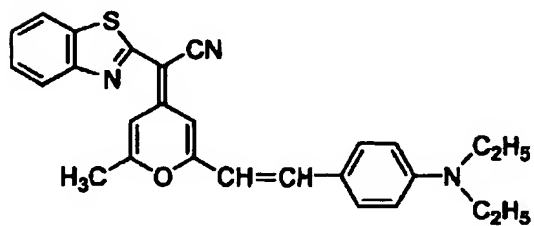
質量平均分子量 11800 (ホリスチレン換算)

m:n=1:100 (質量比)

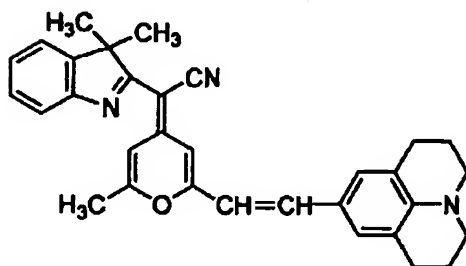
(D-43)



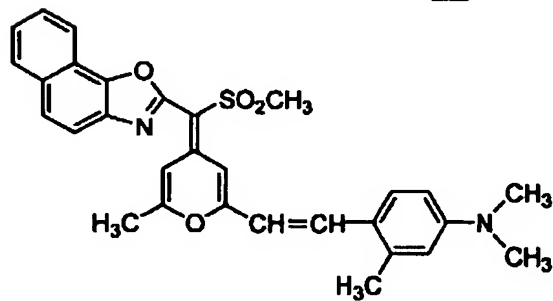
(D-44)



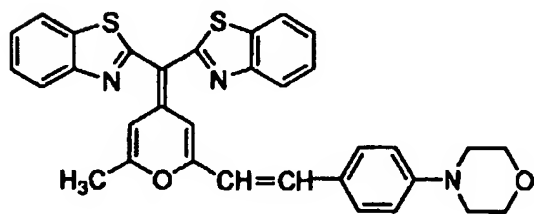
(D-45)



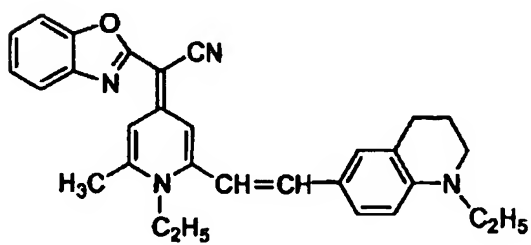
(D-46)



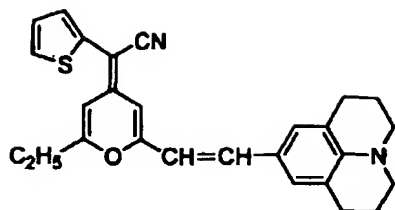
(D-47)



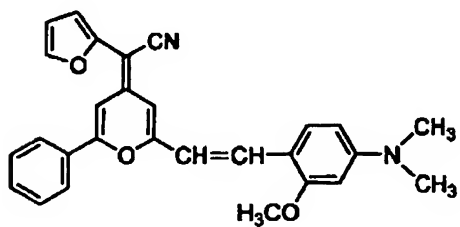
(D-48)



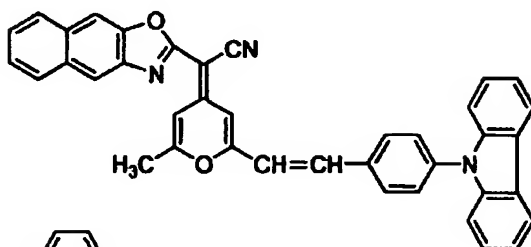
(D-49)



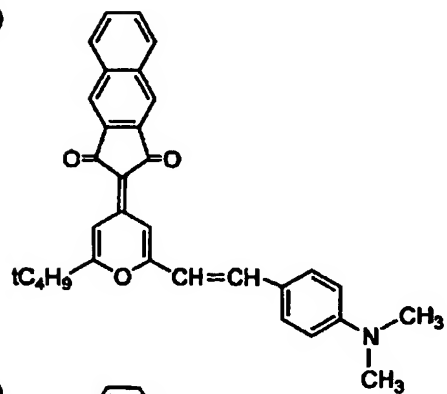
(D-50)



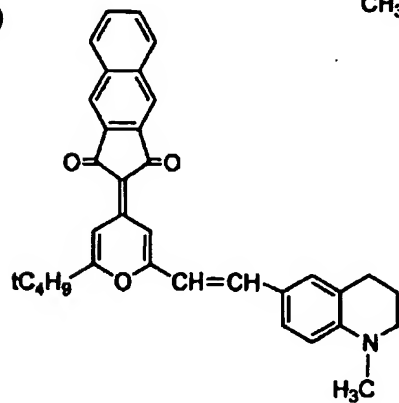
(D-51)



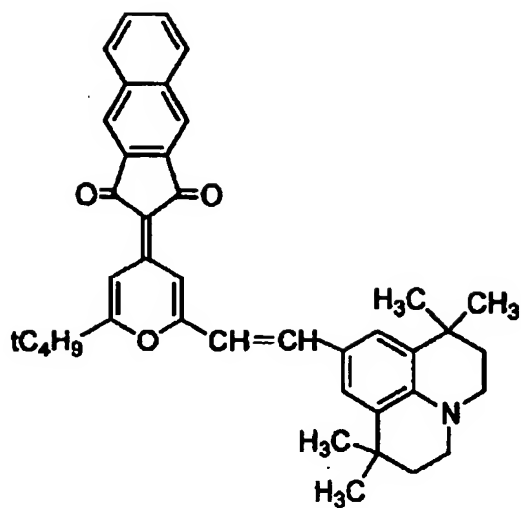
(D-52)



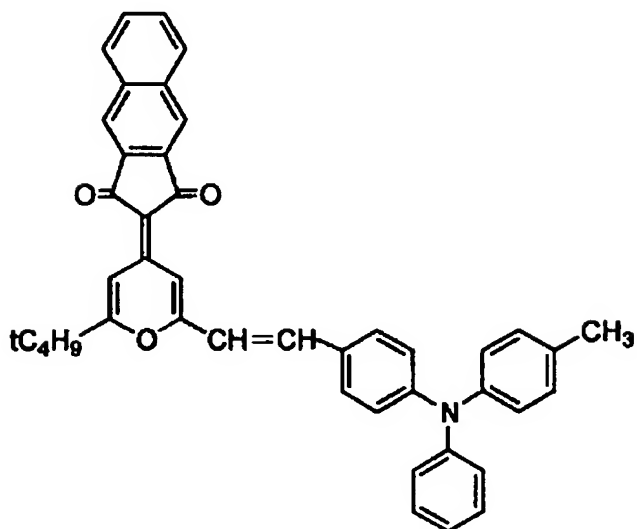
(D-53)



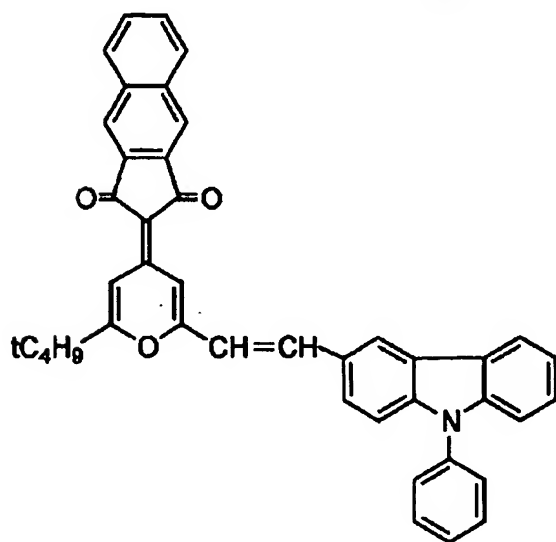
(D-54)



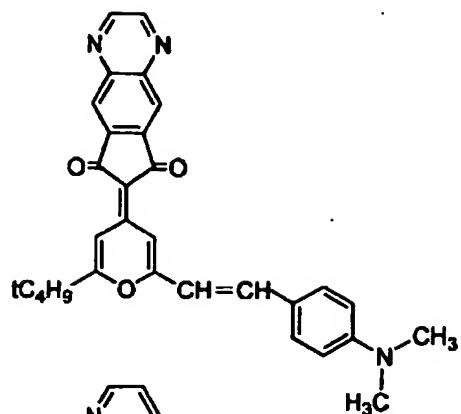
(D-55)



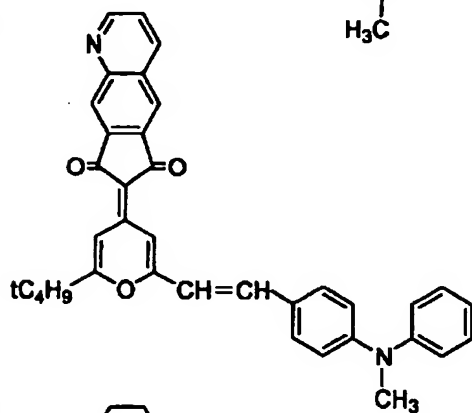
(D-56)



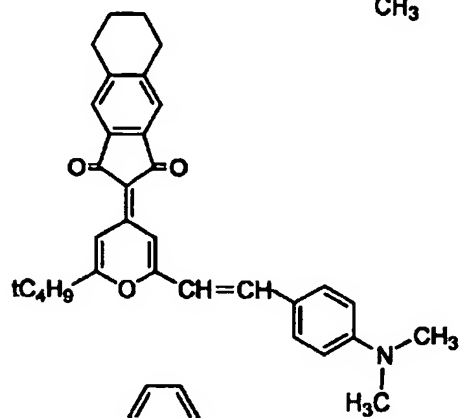
(D-57)



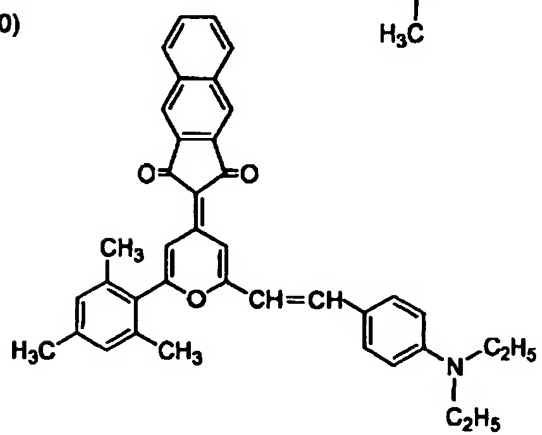
(D-58)



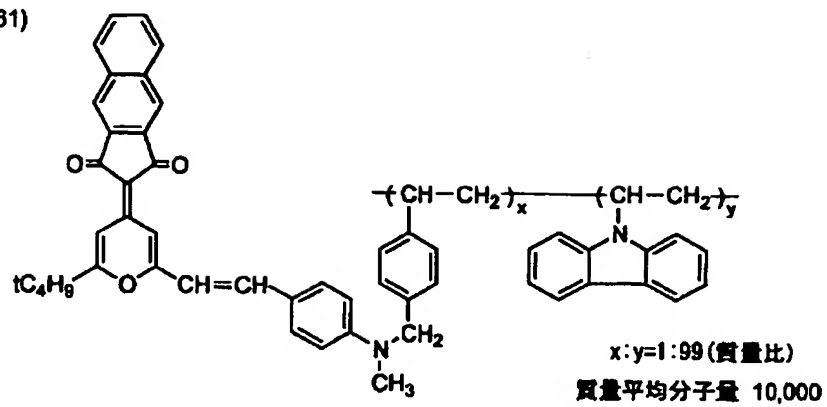
(D-59)



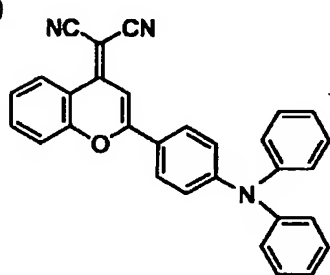
(D-60)



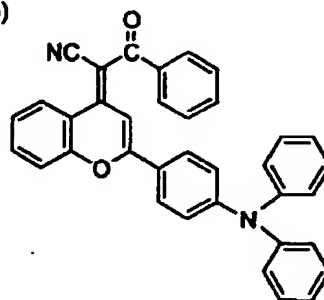
(D-61)



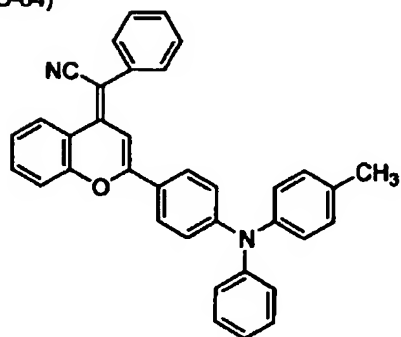
(D-62)



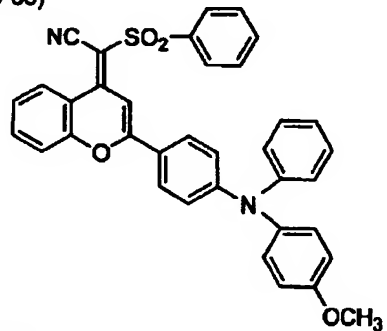
(D-63)



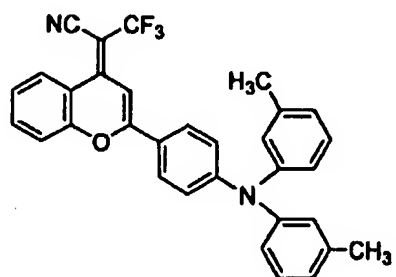
(D-64)



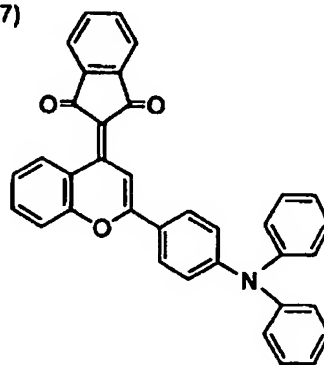
(D-65)



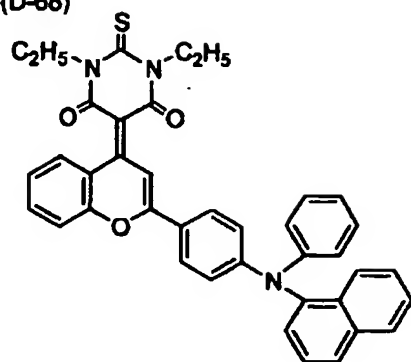
(D-66)



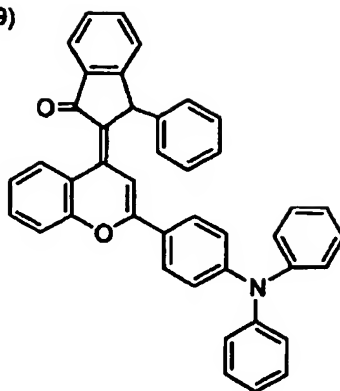
(D-67)



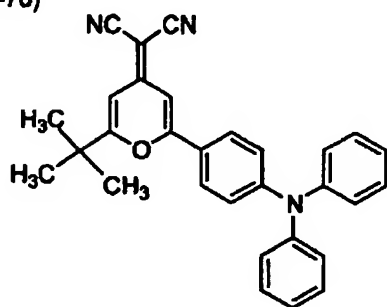
(D-68)



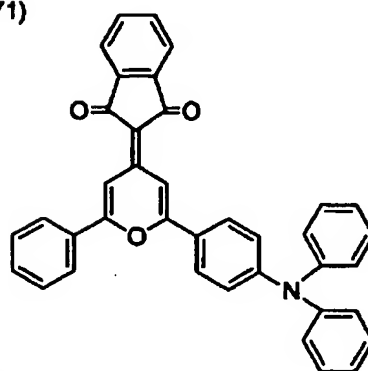
(D-69)



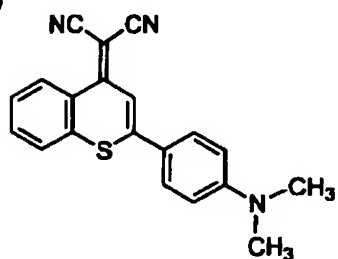
(D-70)



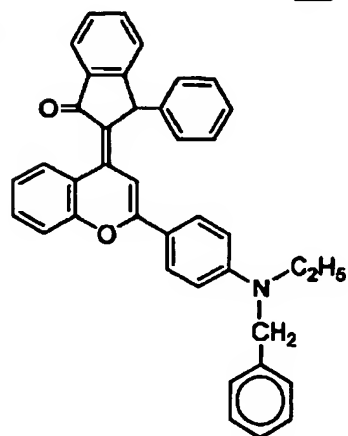
(D-71)



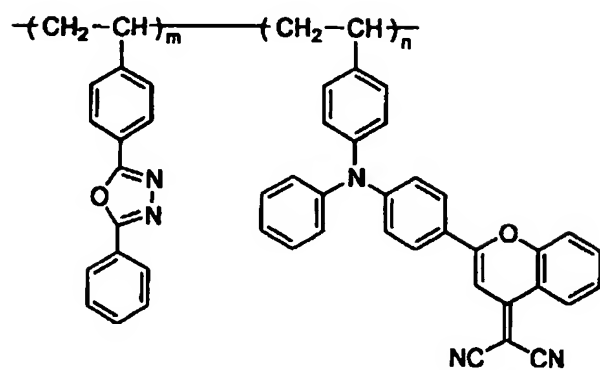
(D-72)



(D-73)



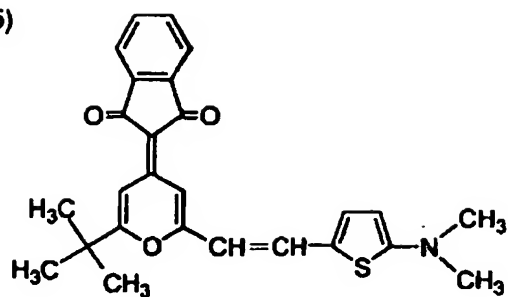
(D-74)



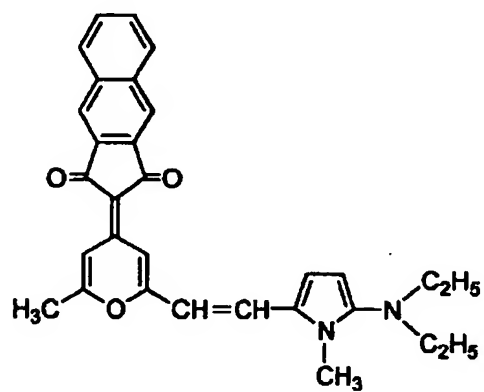
質量平均分子量 150,000

m:n=2:1 質量比

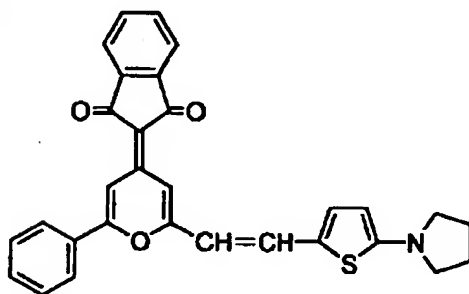
(D-75)



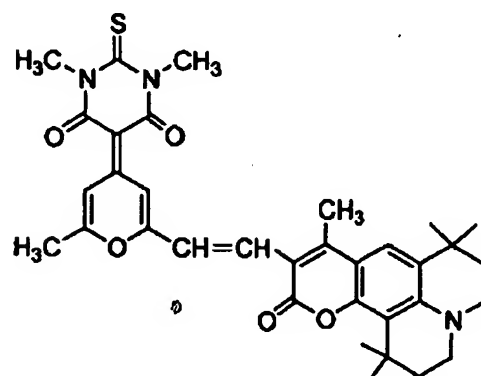
(D-76)



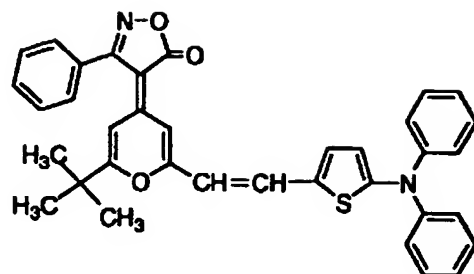
(D-77)



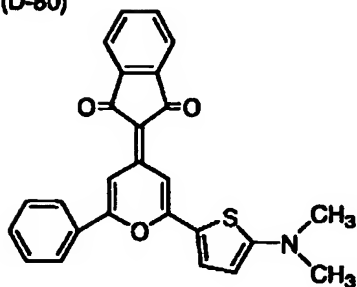
(D-78)



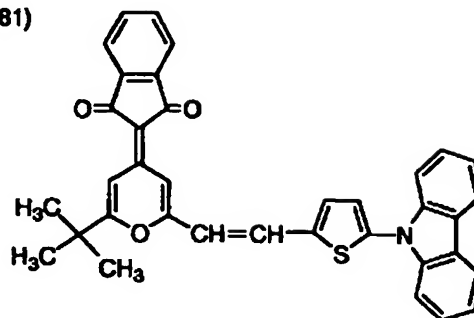
(D-79)



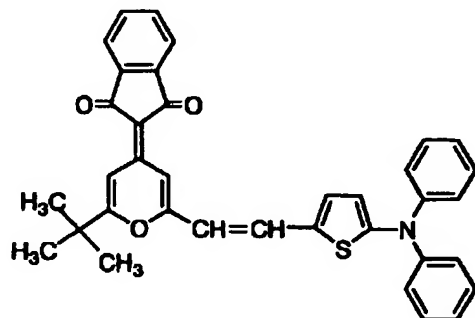
(D-80)



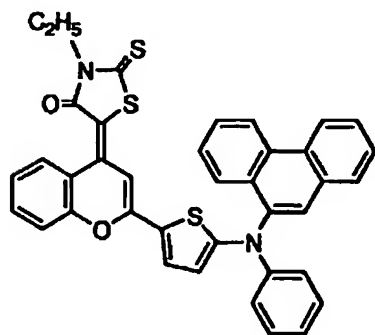
(D-81)



(D-82)



(D-83)



上記化合物は、その互変異性体や金属錯体を形成したものであっても、発光材料として用いることができる。

本発明の一般式 (I) で表される化合物は、例えば特開平 11-335661

号、特開平11-292875号、特開平11-335368号、特願平11-161130号、特願平11-264380号、特願2001-16980号等などに記載の方法を参考にして合成できる。

一般式(I)ないし(IV)で表される化合物から選択される少なくとも一種の化合物の発光層における含有量は、0.01質量%以上50質量%以下であることが好ましく、0.1質量%以上10質量%以下であることがより好ましく、0.3質量%以上5質量%以下であることがさらに好ましい。

次に本発明の一般式(I)で表される化合物から選択される発光材料とホスト材料とを含む発光層に接し、該発光層と陰極の間に存在する有機膜について説明する。本発明の有機膜は電子輸送性を有し、かつ発光層のホスト材料のイオン化ポテンシャルより大きいイオン化ポテンシャルを有するものである。

該有機膜とホスト材料のイオン化ポテンシャルの値は、該有機膜とホスト材料の単層膜をそれぞれ作成し、光電子分光装置(理研計器製 & AC-1)を用い膜状態のイオン化ポテンシャルを測定する方法や、サイクリックボルタンメトリー法により酸化電位を求めることにより溶液でのイオン化ポテンシャルを算出する方法により得ることができる。

該有機膜のイオン化ポテンシャルと発光層のホスト材料のイオン化ポテンシャルの差は好ましくは0.01 eV以上2 eV以下であり、より好ましくは0.1 eV以上2 eV以下であり、特に好ましくは0.2 eV以上2 eV以下である。これに対しイオン化ポテンシャルの差のない場合やホスト材料のイオン化ポテンシャルの方が大きい場合は、発光効率は低下し、パルス駆動時の応答性、特に発光パルス幅の温度依存性も大きくなる。

該有機膜のイオン化ポテンシャルは、5.7 eVより大きく7.0 eV以下が好ましく、5.8 eV以上6.9 eV以下がより好ましく、5.9 eV以上6.8 eV以下がさらに好ましく、6.0 eV以上6.8 eV以下が特に好ましい。

また、該有機膜と陰極の間に更に電子輸送性電子注入性膜を有してもよく、公知の電子輸送及び注入材料が用いられる。

該有機膜を構成する化合物は好ましくは少なくとも2つのヘテロ原子を含むヘテロ環化合物、含窒素ヘテロ環を含有する配位子を有する金属錯体、スチリル誘

導体、アリール置換アリーレン誘導体であり、より好ましくは、少なくとも2つのヘテロ原子を含むヘテロ環化合物、含窒素ヘテロ環を含有する配位子を有する金属錯体、スチリル誘導体であり、特に好ましくは少なくとも2つのヘテロ原子を含むヘテロ環化合物である。

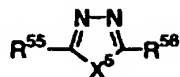
少なくとも2つのヘテロ原子を含むヘテロ環化合物としては、炭素原子および水素原子以外の原子を基本骨格内に2つ以上有する化合物であり、単環または縮環であっても良い。ヘテロ環骨格としては、好ましくはN、O、S原子から選ばれる原子を2つ以上有するものであり、更に好ましくはN原子を少なくとも一つ骨格内に有する芳香族ヘテロ環であり、特に好ましくはN原子を骨格内に2つ以上有する芳香族ヘテロ環である。また、ヘテロ原子は縮合位置にあっても、非縮合位置にあってもよい。

ヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格としては、例えばピラゾール、イミダゾール、オキサゾール、チアゾール、トリアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、ピラジン、ピリミジン、インダゾール、プリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、ペリミジン、フェナントロリン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、ピラゾロイミダゾール、ピラゾロトリアゾール、ピラゾロピリミジン、ピラゾロトリアジン、イミダゾイミダゾール、イミダゾピリダジン、イミダゾピリジン、イミダゾピラジン、トリアゾロピリジン、ベンゾイミダゾール、ナフトイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ナフトオキサゾール、ベンゾチアゾール、ナフトチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、トリアジンなどが挙げられ、好ましくはトリアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、イミダゾピリダジン、イミダゾピリジン、イミダゾピラジン、ベンゾイミダゾール、ナフトイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ナフトオキサゾール、ベンゾチアゾール、ナフトチアゾール、トリアジンであり、より好ましくはイミダゾピリジン、イミダゾピラジン、ベンゾイミダゾール、ナフトイミダゾールであり、更に好ましくはイミダゾピリジン、ベンゾイミダゾール、ナフトイミダゾール、トリアジンであり、特に好ましくはイミダゾピリジンである。

ヘテロ原子を2つ以上含むヘテロ環骨格を有する化合物として、好ましくは下

記一般式 (V) もしくは一般式 (VI) で表される化合物である。

一般式(V)



一般式(VI)

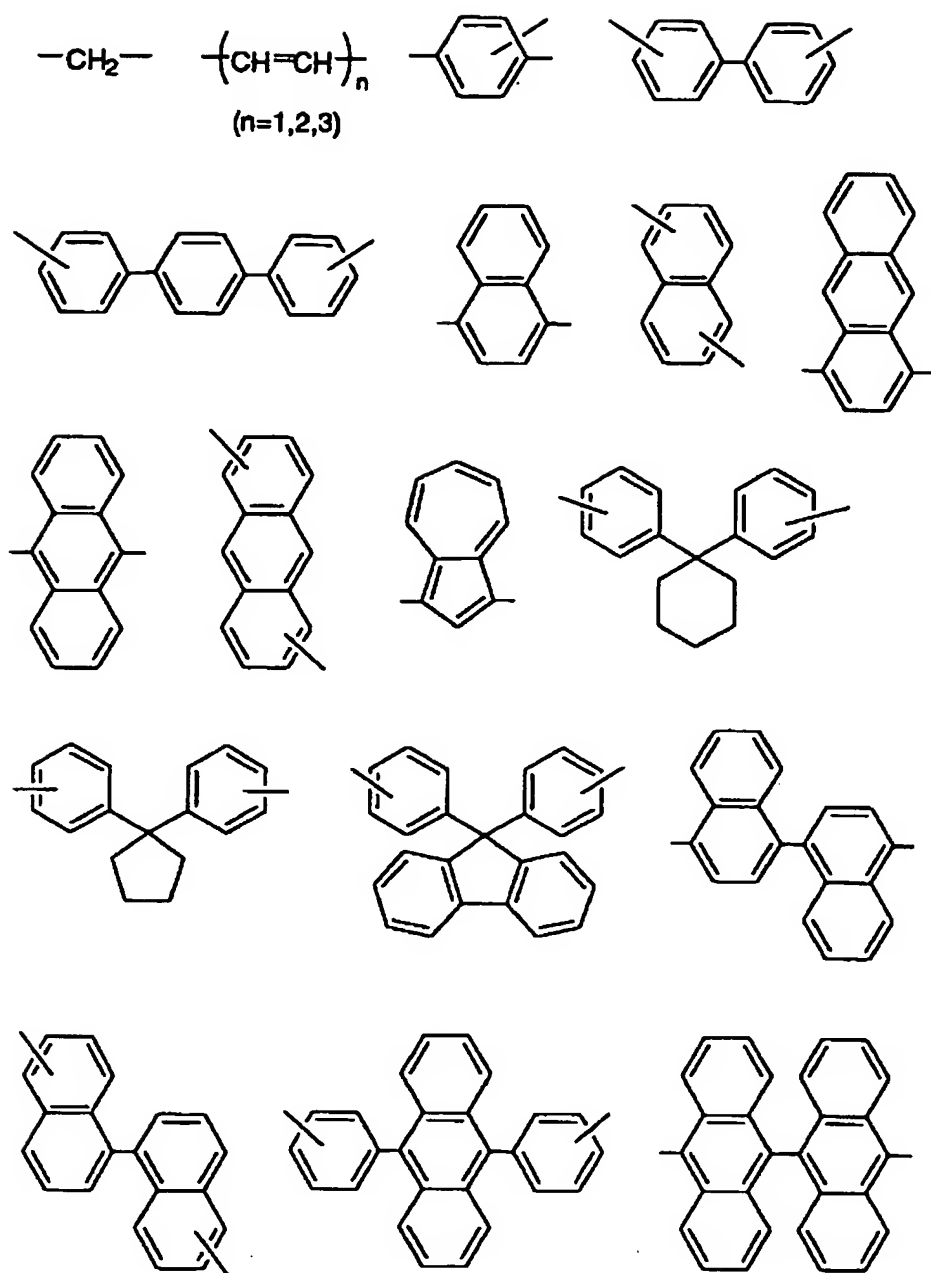


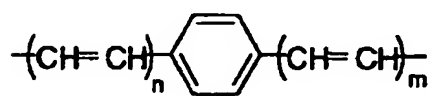
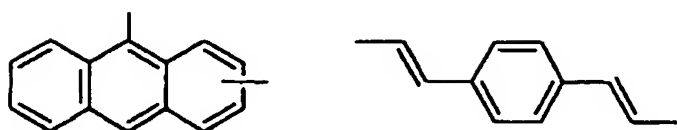
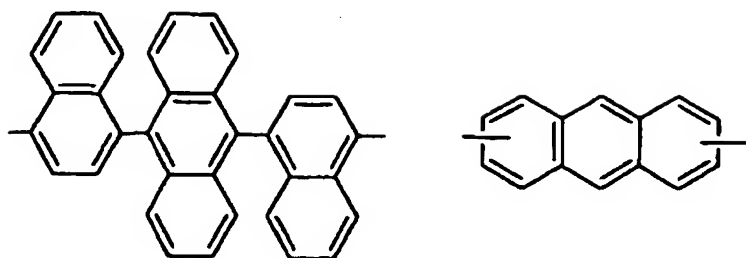
一般式 (V) 中、 R^{55} および R^{56} は、同一または異なって、アルキル基、アリール基、またはヘテロ環基を表し、 X^5 は、酸素原子、硫黄原子、または $\text{N}-\text{R}^{Y5}$ を表し、 R^{Y5} は、水素原子または置換基（アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基またはヘテロ環基）を表す。ここで、アルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基およびヘテロ環基は、一般式 (I) の $\text{R}^1 \sim \text{R}^5$ で表される置換基の説明と同義であり、好ましい範囲も同様である。

一般式 (VI) 中、A は二つ以上のヘテロ原子を含むヘテロ環基を表し、A で表される複数個のヘテロ環基は同一または異なってもよい。 m^6 は、2 以上の整数を表す。 L^6 は連結基を表す。

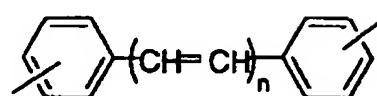
L^6 で表される連結基として、好ましくは単結合、C、N、O、S、Si、Ge などで形成される連結基であり、より好ましくは単結合、アルキレン、アルケニレン、アルキニレン、アリーレン、二価のヘテロ環（好ましくは芳香族ヘテロ環であり、より好ましくはアゾール、チオフェン、フラン環から形成される芳香族ヘテロ環などである。）および N とこれらの組合わせから成る基であり、更に好ましくはアリーレン、二価の芳香族ヘテロ環および N とこれらの組合わせから成る基である。

L^6 で表される連結基の具体例としては、単結合の他、例えば以下のものが挙げられる。

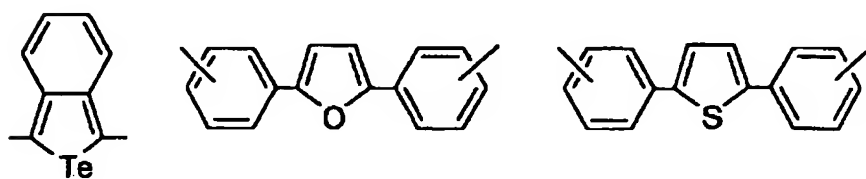
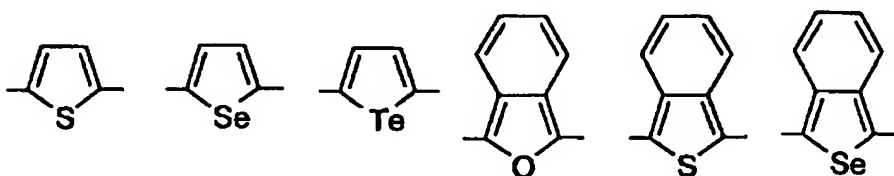
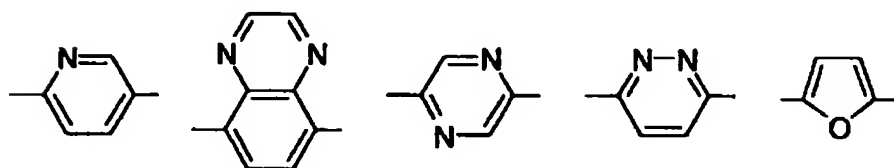


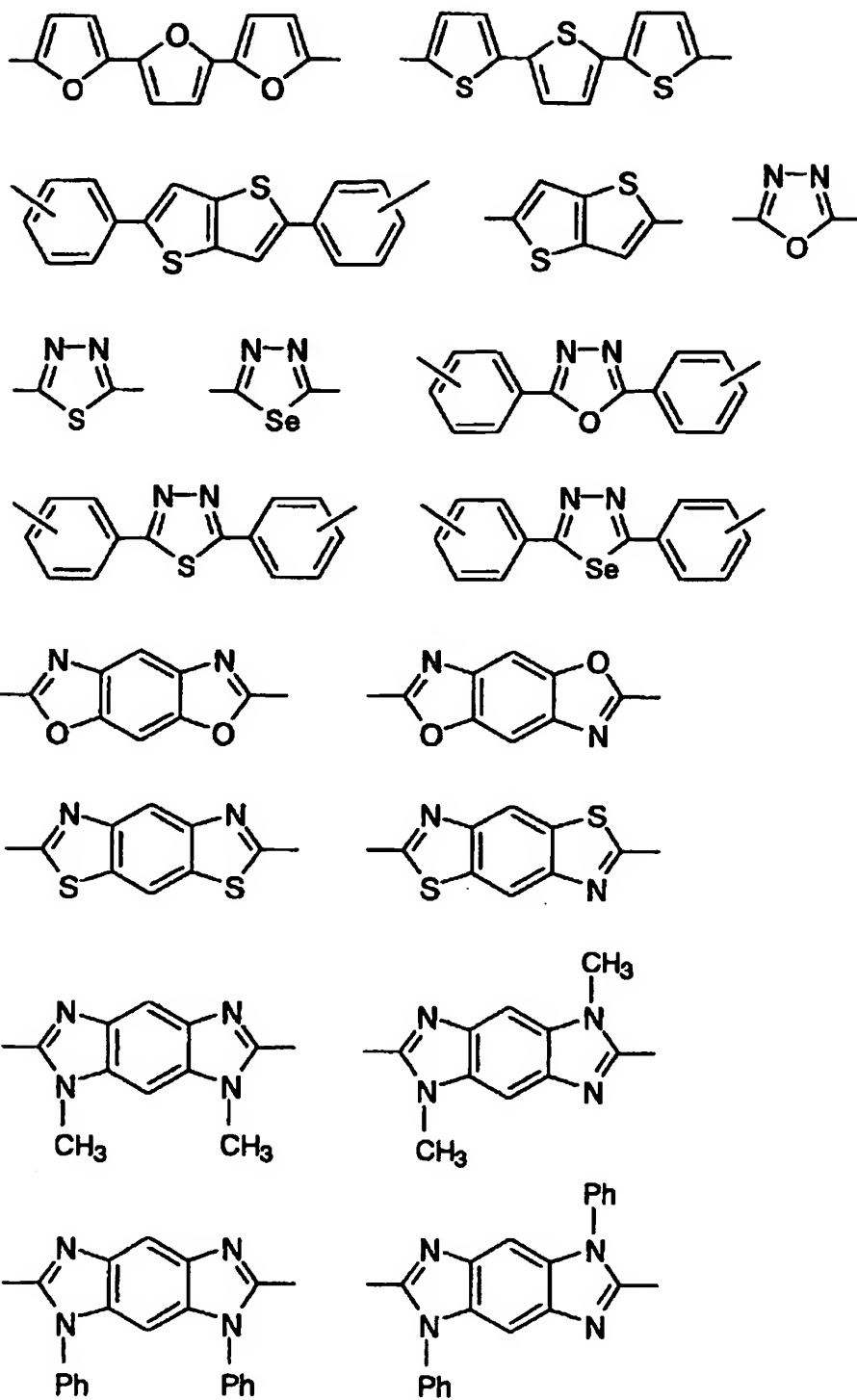


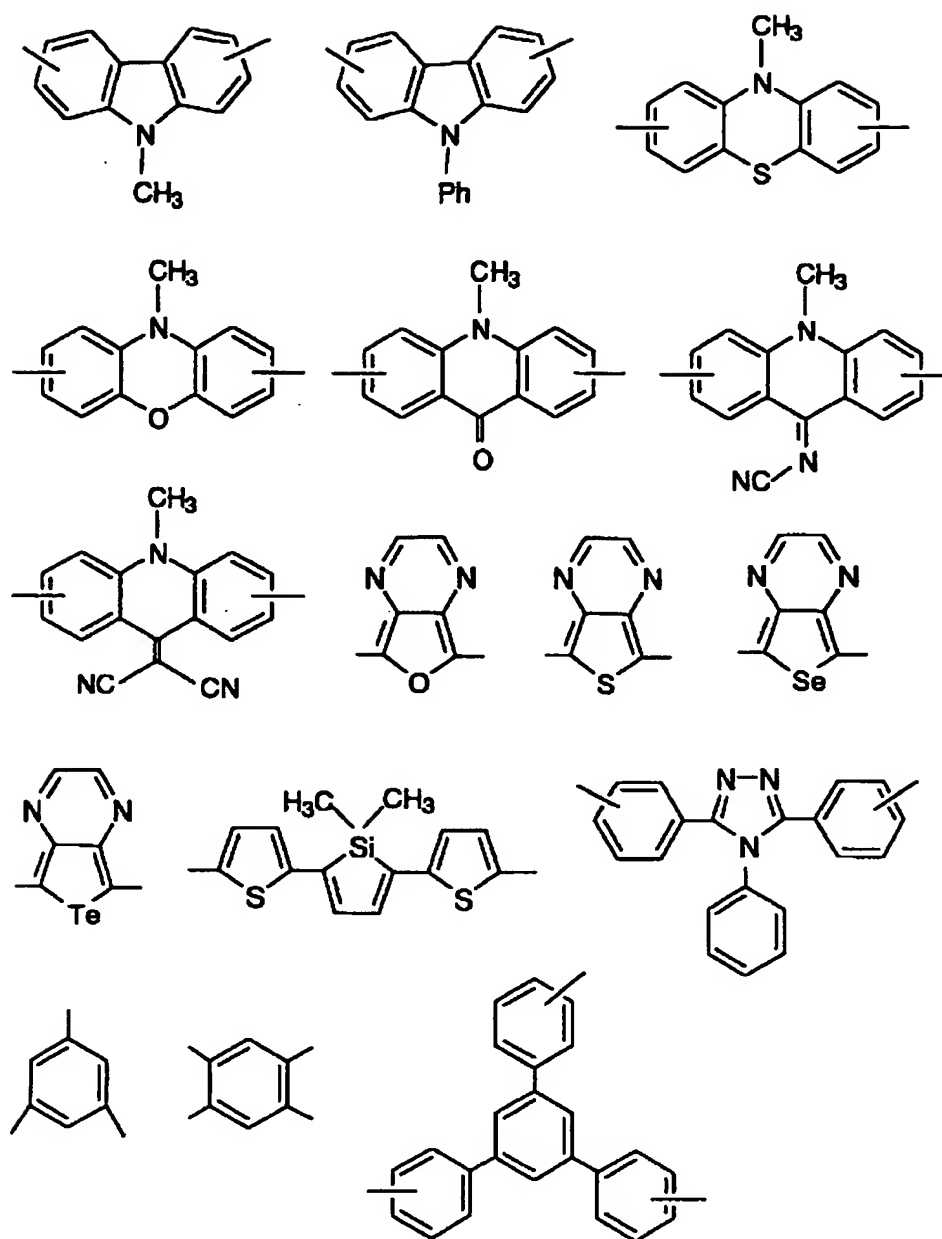
(n=0,1,2,3 m=0,1,2,3)

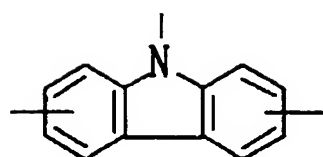
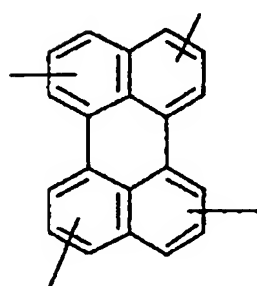
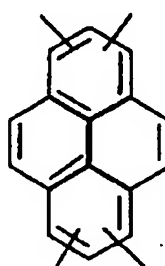
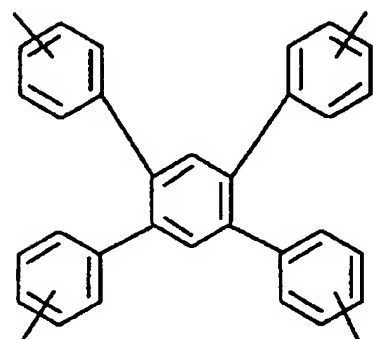
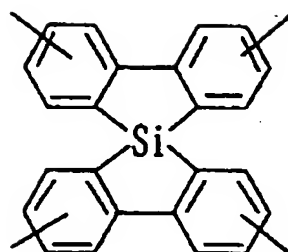
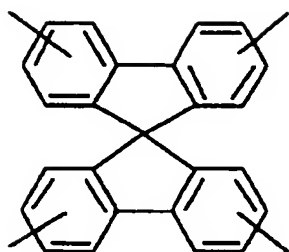


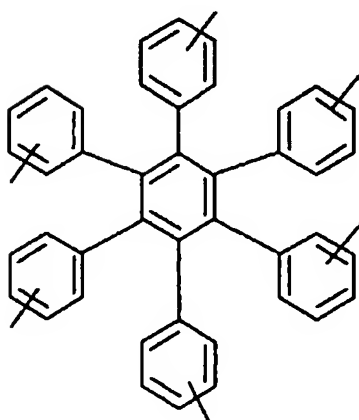
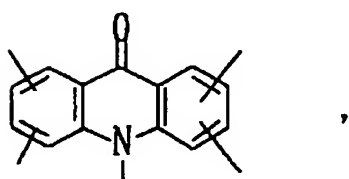
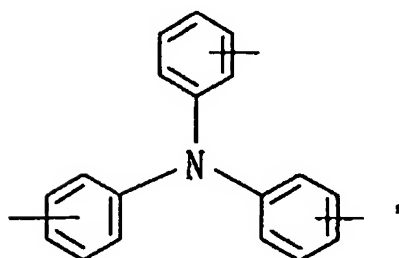
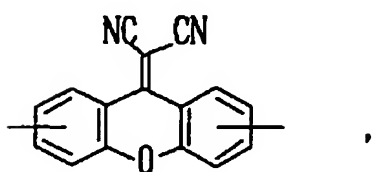
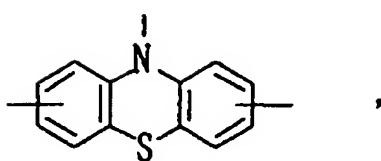
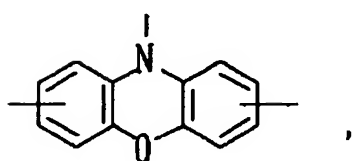
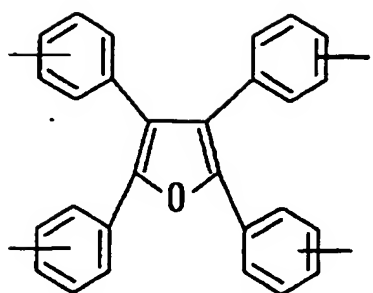
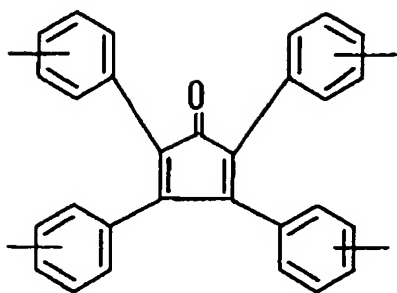
(n=0,1,2,3)

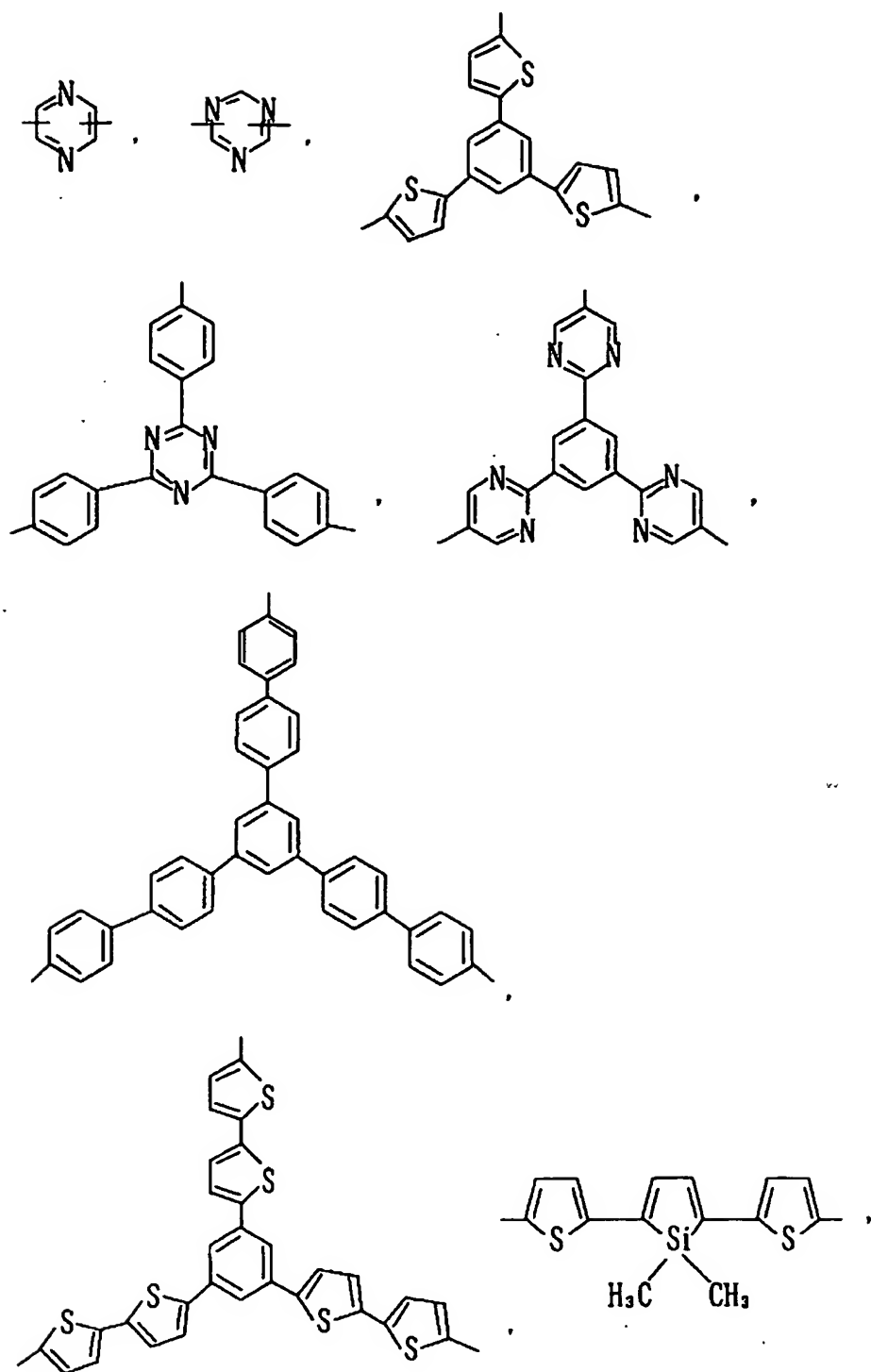










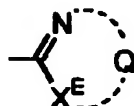


m^6 は2以上の整数を表し、好ましくは2ないし8、より好ましくは2ないし

6、更に好ましくは2ないし4であり、特に好ましくは2または3であり、最も好ましくは3である。

Aが表す二つ以上のヘテロ原子を含むヘテロ環基として、好ましくは下記一般式(E11)で表される化合物が挙げられる。

一般式(E11)



式中、 X^E はO、S、 $N-R^a$ または $C-R^a$ を表し、 R^a は水素原子または置換基（脂肪族炭化水素基、アリール基またはヘテロ環基）を表す。QはNおよび X^E と結合してヘテロ環を形成するのに必要な原子群を表す。

R^a で表される脂肪族炭化水素基は直鎖、分岐または環状のアルキル基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、特に好ましくは炭素数1～8であり、例えばメチル、エチル、*iso*-プロピル、*tert*-ブチル、*n*-オクチル、*n*-デシル、*n*-ヘキサデシル、シクロプロピル、シクロペンチル、シクロヘキシル等が挙げられる。）、アルケニル基（好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～12、特に好ましくは炭素数2～8であり、例えばビニル、アリル、2-ブテニル、3-ペンテニル等が挙げられる。）、アルキニル基（好ましくは炭素数2～20、より好ましくは炭素数2～12、特に好ましくは炭素数2～8であり、例えばプロパルギル、3-ペンチニル等が挙げられる。）であり、より好ましくはアルキル基である。

R^a で表されるアリール基は、単環または縮環のアリール基であり、好ましくは炭素数6～30、より好ましくは炭素数6～20、更に好ましくは炭素数6～12であり、例えばフェニル、2-メチルフェニル、3-メチルフェニル、4-メチルフェニル、2-メトキシフェニル、3-トリフルオロメチルフェニル、ペンタフルオロフェニル、1-ナフチル、2-ナフチル等が挙げられる。

R^a で表されるヘテロ環基は、単環または縮環のヘテロ環基（好ましくは炭素数1～20、より好ましくは炭素数1～12、更に好ましくは炭素数2～10の

ヘテロ環基)であり、好ましくは窒素原子、酸素原子、硫黄原子、セレン原子の少なくとも一つを含む芳香族ヘテロ環基である。R^aで表されるヘテロ環基の具体例としては、例えばピロリジン、ピペリジン、ピペラジン、モルフォリン、チオフェン、セレノフェン、フラン、ピロール、イミダゾール、ヒラゾール、ビリジン、ピラジン、ビリダジン、ビリミジン、トリアゾール、トリアジン、インドール、インダゾール、プリン、チアゾリン、チアゾール、チアジアゾール、オキサゾリン、オキサゾール、オキサジアゾール、キノリン、イソキノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、アクリジン、フェナントロリン、フェナジン、テトラゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ベンゾチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、カルバゾール、アゼピン等が挙げられ、好ましくは、フラン、チオフェン、ビリジン、ピラジン、ビリミジン、ビリダジン、トリアジン、キノリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリンであり、より好ましくはフラン、チオフェン、ビリジン、キノリンであり、更に好ましくはキノリンである。

R^aで表される脂肪族炭化水素基、アリール基、ヘテロ環基は、置換基を有していてもよく、置換基としては一般式(I)におけるR¹からR⁵で表される基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい置換基も同様である。

R^aとして、好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、より好ましくはアリール基、芳香族ヘテロ環基であり、更に好ましくはアリール基である。

X^Eとして好ましくはO、N-R^aであり、より好ましくはN-R^aであり、特に好ましくはN-Ar (Arはアリール基(好ましくは炭素数6~30、より好ましくは炭素数6~20、更に好ましくは炭素数6~12のアリール基)、芳香族ヘテロ環基(好ましくは炭素数1~20、より好ましくは炭素数1~12、更に好ましくは炭素数2~10の芳香族ヘテロ環基)であり、好ましくはアリール基である。)である。

Qは、NおよびX^Eと結合してヘテロ環を形成するに必要な原子群をあらわす。Qで形成されるヘテロ環として好ましくは芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは5~8員の芳香族ヘテロ環であり、更に好ましくは5または6員環の芳香族

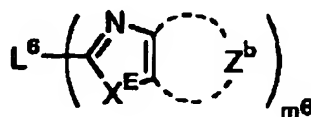
ヘテロ環であり、特に好ましくは5員環の芳香族ヘテロ環である。

Qで形成されるヘテロ環の具体例としては、イミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、セレナゾール環、テルラゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、オキサトリアゾール環、チアトリアゾール環、ヒリジン環、ヒラジン環、ヒリダジン環、ヒリミジン環等が挙げられ、好ましくはイミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環であり、より好ましくはイミダゾール環、オキサゾール環であり、更に好ましくはイミダゾール環である。

Qで形成されるヘテロ環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また、置換基を有していてもよい。置換基としては、例えば一般式(I)における $R^1 \sim R^5$ で表される基の置換基として挙げたものが適用できる。Qの置換基として好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族ヘテロ環基である。

一般式(VI)で表される化合物のうち、好ましくは下記一般式(E12)で表される化合物である。

一般式(E12)



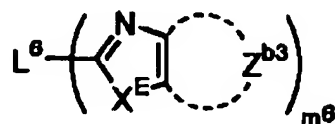
式中、 L^a および m^a は、一般式(VI)のそれぞれと同義であり、 X^E は一般式(E11)と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 Z^b は芳香族環を形

成するに必要な原子群を表す。Z^bで形成される芳香族環は芳香族炭化水素環、芳香族ヘテロ環のいずれでもよく、具体例としては、例えばベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環、ピロール環、フラン環、チオフェン環、セレノフェン環、テルロフェン環、イミダゾール環、チアゾール環、セレナゾール環、テルラゾール環、チアジアゾール環、オキサジアゾール環、ピラゾール環などが挙げられ、好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環、ピリミジン環、ピリダジン環であり、より好ましくはベンゼン環、ピリジン環、ピラジン環であり、更に好ましくはベンゼン環、ピリジン環であり、特に好ましくはピリジン環である。

Z^bで形成される芳香族環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有していてもよい。置換基としては例えば一般式(I)におけるR¹~R⁵で表される基の置換基として挙げたものが適用でき、Z^bで形成される芳香族環の置換基としては、好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、アミノ基、アルコキシ基、アリーールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、アリーールオキシカルボニル基、アシルオキシ基、アシルアミノ基、アルコキシカルボニルアミノ基、アリーールオキシカルボニルアミノ基、スルホニルアミノ基、スルファモイル基、カルバモイル基、アルキルチオ基、アリーールチオ基、スルホニル基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、より好ましくはアルキル基、アルケニル基、アリール基、アルコキシ基、アリーールオキシ基、ハロゲン原子、シアノ基、ヘテロ環基であり、更に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、アリーールオキシ基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくはアルキル基、アリール基、アルコキシ基、芳香族ヘテロ環基である。

一般式(VI)で表される化合物のうち、更に好ましくは一般式(E13)で表される化合物である。

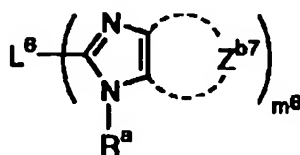
一般式(E13)



式中、 L^6 、 X^E および m^6 は、それぞれ一般式 (VI) および (E 1 1) におけるそれらと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 Z^{b3} は、芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表す。 Z^{b3} で形成される芳香族ヘテロ環としては、好ましくは5または6員の芳香族ヘテロ環であり、より好ましくは5または6員の含窒素芳香族ヘテロ環であり、更に好ましくは6員の含窒素芳香族ヘテロ環である。 Z^{b3} で形成される芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばフラン、チオフエン、ピラン、ピロール、イミダゾール、ピラゾール、ビリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、チアゾール、オキサゾール、イソチアゾール、イソオキサゾール、チアジアゾール、オキサジアゾール、トリアゾール、セレナゾール、テルラゾールなどが挙げられ、好ましくはビリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンであり、より好ましくはビリジン、ピラジンであり、更に好ましくはビリジンである。 Z^{b3} で形成される芳香族ヘテロ環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また置換基を有してもよい。置換基としては一般式 (I) の $R^1 \sim R^5$ で表される基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい範囲も同様である。

一般式 (VI) で表される化合物のうち、更に好ましくは一般式 (E 1 4) で表される化合物である。

一般式(E14)

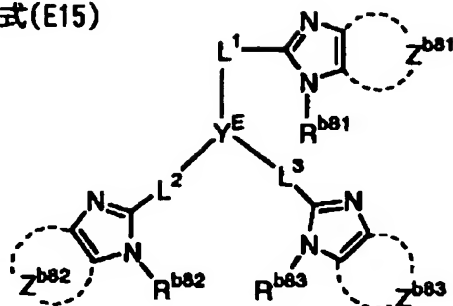


式中、 L^6 、 m^6 は一般式 (VI) におけるそれと同義であり、また好ましい範囲も同様である。 Z^{b7} は、6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表し、 Z^{b7} で形成される6員の含窒素芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばビリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジン、トリアジンなどが挙げられ、好ましくはビリジン、ピラジン、ピリミジン、ピリダジンであり、より好ましくはビリジン、ピラジンであり、更に好ましくはビリジンである。 Z^{b7} で形成される6員の含窒素ヘテロ環は更に他の環と縮合環を形成してもよく、また

置換基を有しても良い。

一般式 (VI) で表される化合物のうち、更に好ましくは一般式 (E 15) で表される化合物である。

一般式(E15)



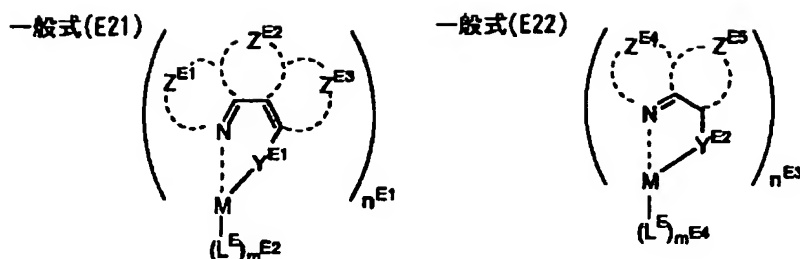
式中、 R^{b81} 、 R^{b82} および R^{b83} は、それぞれ一般式 (E 11) における R^a と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 Z^{b81} 、 Z^{b82} および Z^{b83} は、それぞれ一般式 (E 13) における Z^{b3} と同義であり、また好ましい範囲も同様である。 L^1 、 L^2 および L^3 は、それぞれ一般式 (VI) における L^6 と同義である。 L^1 、 L^2 、 L^3 として好ましくは、単結合、アリーレン、二価の芳香族ヘテロ環およびこれらの組合わせから成る連結基であり、より好ましくは単結合、ベンゼン、ナフタレン、アントラセン、ピリジン、ピラジン、チオフェン、フラン、オキサゾール、チアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、トリアゾールおよびこれらの組合わせから成る連結基であり、更に好ましくは単結合、ベンゼン、チオフェンおよびこれらの組合わせから成る連結基であり、特に好ましくは単結合、ベンゼンおよびこれらの組合わせから成る連結基であり、最も好ましくは単結合である。 L^1 、 L^2 、 L^3 は置換基を有してもよく、置換基としては、一般式 (I) の $R^1 \sim R^5$ で表される基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい範囲も同様である。

Y^E は窒素原子または1, 3, 5-ベンゼントリイル基を表すが、後者は2, 4, 6位に置換基を有してもよく、置換基としては例えばアルキル基、アリール基、ハロゲン原子などが挙げられる。 Y^E としては、好ましくは窒素原子または無置換1, 3, 5-ベンゼントリイル基であり、より好ましくは無置換1, 3,

5-ベンゼントリイル基である。

次に、含窒素ヘテロ環化合物を含有する配位子を有する金属錯体について説明する。該含窒素ヘテロ環骨格としては例えばピラゾール、イミダゾール、オキサゾール、チアゾール、トリアゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、ビリジン、ピラジン、ビリミジン、ビリダジン、キノリン、イソキノリン、インダゾール、プリン、フタラジン、ナフチリジン、キノキサリン、キナゾリン、シンノリン、プテリジン、ペリミジン、フェナントロリン、ピロロイミダゾール、ピロロトリアゾール、ピラゾロイミダゾール、ピラゾロトリアゾール、ピラゾロビリミジン、ピラゾロトリアジン、イミダゾイミダゾール、イミダゾビリダジン、イミダゾビリジン、イミダゾピラジン、トリアゾロビリジン、ベンゾイミダゾール、ナフトイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ナフトオキサゾール、ベンゾチアゾール、ナフトチアゾール、ベンゾトリアゾール、テトラザインデン、トリアジンなどが挙げられ、好ましくはトリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、チアジアゾール、イミダゾビリダジン、イミダゾビリジン、イミダゾピラジン、ベンゾイミダゾール、ナフトイミダゾール、ベンゾオキサゾール、ナフトオキサゾール、ベンゾチアゾール、ナフトチアゾール、ビリジン、キノリン、トリアジンであり、より好ましくはトリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、ビリジン、キノリン、トリアジンであり、特に好ましくはトリアゾール、オキサゾール、オキサジアゾール、ビリジン、キノリンである。

該金属錯体は配位子に配位基として含窒素ヘテロ環が有する窒素原子の他に、アルコキシ基、アリアルオキシ基、ヘテロアリアルオキシ基、スルホンアミド基もしくはアミド基などを有し、二座配位子を形成するものが好ましい。該金属錯体は好ましくは一般式(E 2 1)もしくは一般式(E 2 2)で表される化合物である。

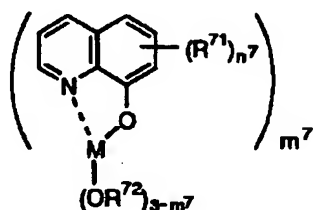


一般式(E21)もしくは一般式(E22)中において、 Z^{E1} および Z^{E4} は5ないし6員の含窒素芳香族ヘテロ環を形成するに必要な原子群を表し、 Z^{E1} および Z^{E4} で形成される含窒素芳香族ヘテロ環の具体例としては、例えばイミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、セレナゾール環、テルラゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、ピリジン環、ピラジン環、ピリダジン環、ピリミジン環等が挙げられる。

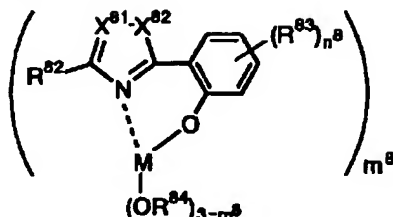
Z^{E2} および Z^{E3} の少なくとも一方は、アリール基もしくは5ないし6員の芳香族ヘテロ環基を形成する原子群を表す。 Z^{E5} は、アリール基もしくは5ないし6員の芳香族ヘテロ環基を形成する原子群を表す。 Z^{E2} 、 Z^{E3} 、 Z^{E5} が形成するアリール基、5ないし6員の芳香族ヘテロ環基は、ベンゼン環、イミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、セレナゾール環、テルラゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環、オキサトリアゾール環、チアトリアゾール環、ピリジン環、ピラジン環、ピリダジン環、ピリミジン環等が挙げられる。 Y^{E1} 、 Y^{E2} は酸素原子、スルホンアミド解離基、アシルアミノ解離基を表し、 Z^{E3} 、 Z^{E5} と連結して環を形成しても良い。 Y^{E1} 、 Y^{E2} が表すスルホンアミド解離基、アシルアミノ解離基は一般式(I)の $R^1 \sim R^5$ が表すスルホンアミド基、アシルアミノ基の例の内、解離可能な水素原子が解離したものである。 Y^{E1} 、 Y^{E2} として好ましくは、酸素原子、スルホンアミド解離基であり、より好ましくは酸素原子である。 L^E は、アルコキシ基、アリールオキシ基、ヘテロアリールオキシ基、ヒドロキシ基を表す。 n^{E1} 、 n^{E3} は、2または3を表し、 m^{E2} 、 m^{E4} は、0または1を表す。 M は金属原子を表し、好ましくはアルミニウム、亜鉛、ホウ素、ベリリウムを表す。一般式(E21)は好ましくは一般式(VIII)で表される化合物であり、一般式(E2

2) で表される化合物のうち、好ましくは一般式 (VII) 又は (VIII) で表される化合物である。

一般式(VII)



一般式(VIII)

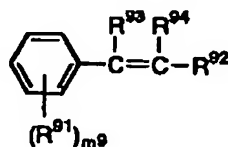


一般式 (VII) 中、 R^{71} は置換基を表し、 R^{72} は水素原子、脂肪族基、アリール基、芳香族ヘテロ環基を表し、 M は金属原子を表し、 n^7 は 0～6 の整数を表し、 m^7 は 2 もしくは 3 を表す。ただし $m^7 = 3$ のとき $n^7 \neq 0$ である。 n^7 が 2～6 の整数を表すとき、複数の R^{71} は同じであっても異なってもよく互いに連結して環を形成しても良い。 R^{71} が表す置換基としては一般式 (I) の $R^1 \sim R^5$ で表される基の置換基として挙げたものが適用でき、また好ましい範囲も同様である。 R^{71} はより好ましくは脂肪族基、アリール基、ヘテロ環基である。 R^{72} は好ましくは水素原子、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。一般式 (VIII) 中、 X^{81} は窒素原子、 $C-R^{81}$ を表し、 X^{82} は酸素原子、硫黄原子、 $N-R^{82}$ を表し、 R^{81} 、 R^{82} 、 R^{83} 、 R^{84} は水素原子または置換基を表す。 R^{81} と R^{82} は連結して環を形成しても良い。 R^{84} は水素原子、脂肪族基、アリール基、芳香族ヘテロ環基を表し、 M は金属原子を表し、好ましくはアルミニウム、亜鉛、ホウ素、ベリリウムを表す。 n^8 は 0 ないし 4 の整数を表す。 m^8 は 2 ないし 3 を表す。 n^8 が 2 ないし 4 の整数を表すとき、複数の R^{83} は同じであっても異なっても良く、互いに結合して環を形成しても良い。 R^{83} 、 R^{84} の好ましい範囲はそれぞれ R^{71} 、 R^{72} と同様である。 X^{81} 、 X^{82} からなる含窒素ヘテロ環は好ましくはイミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、セレナゾール環、テルラゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジアゾール環が挙げられ、更に好ましくはイミダゾール環、オキサゾール環、チアゾール環、トリアゾール環、テトラゾール環、オキサジアゾール環、チアジア

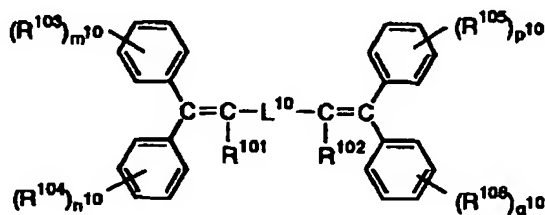
ゾール環が挙げられる。 R^{81} 、 R^{82} は一般式(I)の $R^1 \sim R^5$ の置換基と同義であり、好ましい範囲も同様である。 R^{81} 、 R^{82} は好ましくは脂肪族基、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。

次に、スチリル誘導体について説明する。スチリル誘導体として好ましくは、一般式(IX)または一般式(X)で表される化合物である。

一般式(IX)



一般式(X)

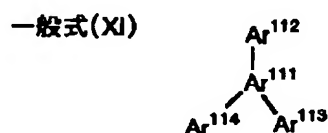


一般式(IX)中、 R^{91} は置換基を表す。 R^{92} ないし R^{94} は水素原子ないし置換基を表し、複数の R^{91} は互いに連結して縮環を形成しても良い。 m^9 は0ないし5の整数を表す。 R^{91} ないし R^{94} が表す置換基としては例えば $R^1 \sim R^5$ の置換基として挙げたものが適用でき、好ましい範囲も同様である。 R^{91} 、 R^{92} として、好ましくはアルキル基、アルケニル基、アルキニル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、シリル基であり、更に好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、シリル基であり、特に好ましくは水素原子、芳香族ヘテロ環基、シリル基である。 m^9 が2ないし5の時、複数の R^{91} は同一であっても異なっても良く、連結して環を形成しても良い。 R^{93} 、 R^{94} は好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基である。

一般式(X)中、 R^{101} および R^{102} は水素原子または置換基を表し、 R^{103} ないし R^{106} は置換基を表す。 L^{10} は連結基を表し、 m^{10} 、 n^{10} 、 p^{10} 、 q^{10} は0ないし5の整数を表す。 R^{101} ないし R^{106} が表す置換基としては、例えば $R^1 \sim R^5$ の置換基として挙げたものが適用でき、好ましい範囲も同様である。

。 m^{10} 、 n^{10} 、 p^{10} 、 q^{10} が2ないし5のとき、複数の R^{103} ないし R^{106} は同一であっても異なっても良く、連結して縮環を形成しても良い。また R^{103} と R^{104} 、 R^{103} と R^{104} は連結して環を形成してもよい。 R^{101} と R^{102} は好ましくは水素原子、アルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基であり、特に好ましくは水素原子である。 L^{10} で表される連結基の具体例としては一般式 (VI) の L^6 の具体例と同義である。

次に、アリール置換アリーレン誘導体について説明する。アリール置換アリーレン誘導体はアリール基をアリーレン基で連結したものを表し、アリーレン基の具体例としては一般式 (VI) の L^6 で表される連結基として挙げられたアリーレン基が適用でき、好ましくは2ないし3価のアリーレン基である。アリール置換アリーレン誘導体は好ましくは一般式 (XI) で表される化合物である。

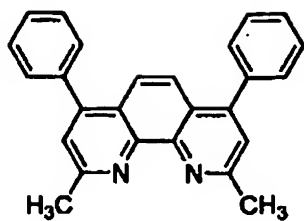


一般式 (XI) 中、 Ar^{111} の具体例としては好ましくは一般式 (VI) の L^6 で表される連結基として挙げられた3価のアリーレン基が適用でき、より好ましくは1, 3, 5-ベンゼントリイル基である。 Ar^{112} ないし Ar^{114} はアリール基を表し、好ましくは炭素数6~40、より好ましくは炭素数6~30、特に好ましくは炭素数6~20であり、例えばフェニル、p-メチルフェニル、ナフチル、アントリル、フェナントリル、ビレニル等が挙げられる。 Ar^{112} ないし Ar^{114} は更に置換されていても良く、置換基として好ましくはアルキル基、アリール基、芳香族ヘテロ環基、シリル基である。

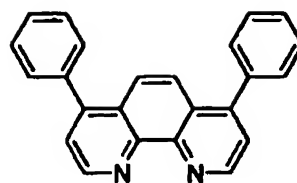
一般式 (V) ないし (XI) で表される化合物から選択される少なくとも一種の化合物の有機膜における含有量は、50質量%以上100質量%以下であることが好ましく、90質量%以上100質量%以下であることがより好ましく、100質量%であることがさらに好ましい。該有機膜の他の成分としては、電荷輸送性のない材料を含有してもよい。

本発明の一般式（I）で表される発光材料とホスト材料とを含む発光層に接し、該発光層と陰極の間に存在する有機膜を構成する化合物の具体例を、以下に示すが、それ以外に特願2000—254171号、特願2000—290626号、特願2000—38578号、特願2000—111014号、特願平11—108207号、特願平11—217820号、特願平11—36107号、特願平11—232744号、特開2000—229966号、特開2000—229957号、特開2000—229941号、特開平11—185959号、特開平11—144872に記載した例が挙げられる。しかし、本発明はこれらに限定されるものではない。なお、下記に示す化学式中の点線は配位結合を表す。

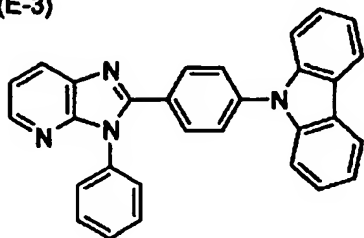
(E-1)



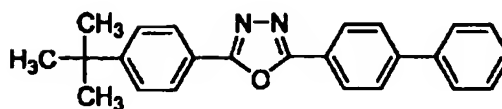
(E-2)



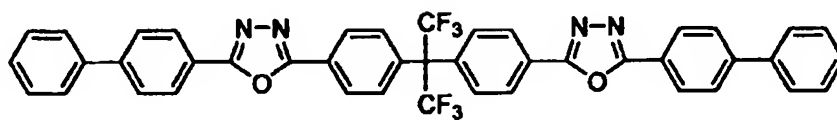
(E-3)



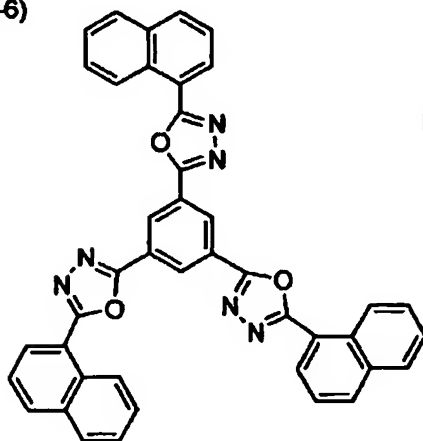
(E-4)



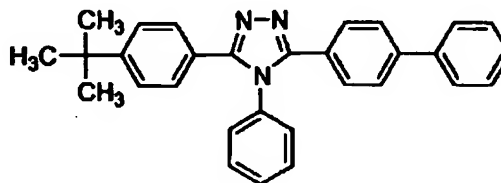
(E-5)



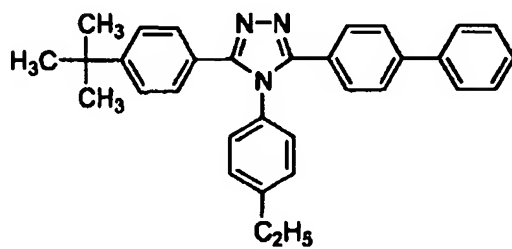
(E-6)



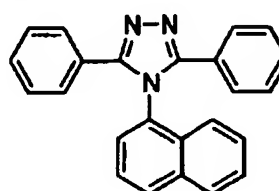
(E-7)



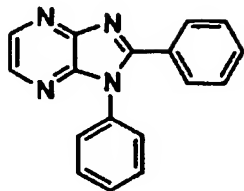
(E-8)



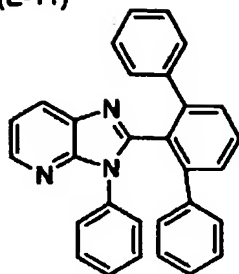
(E-9)



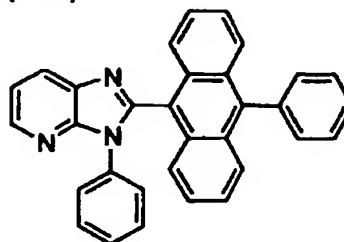
(E-10)



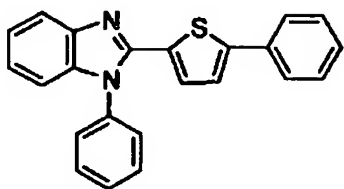
(E-11)



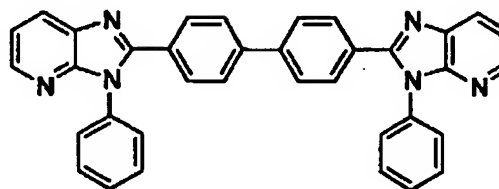
(E-12)



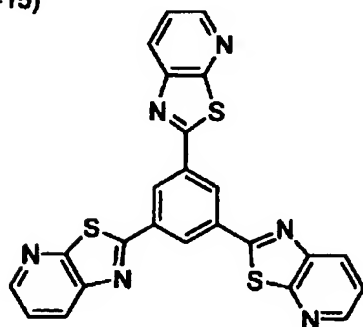
(E-13)



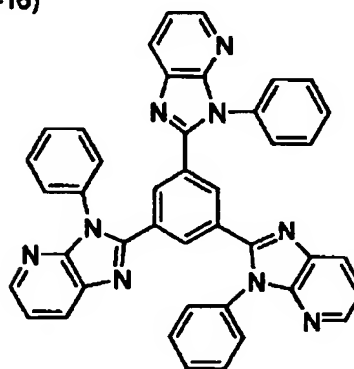
(E-14)



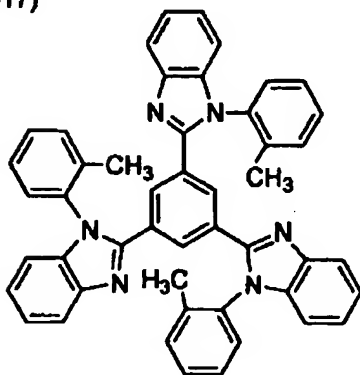
(E-15)



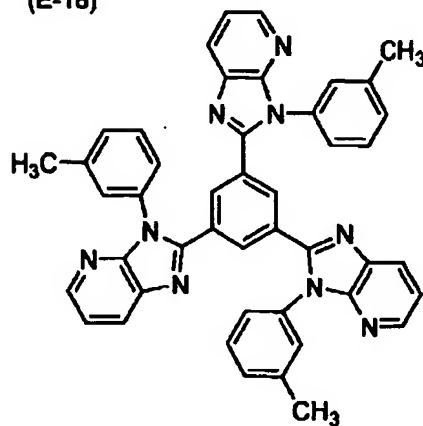
(E-16)



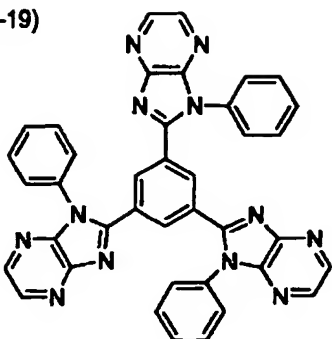
(E-17)



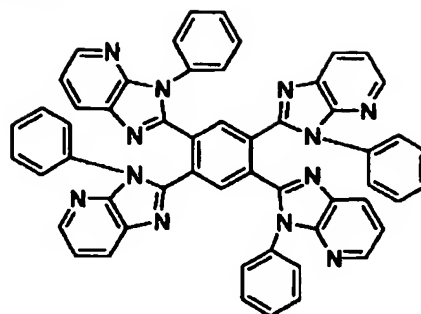
(E-18)



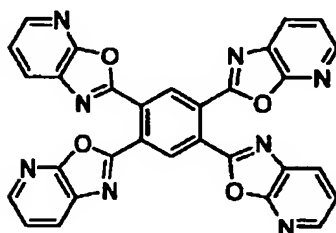
(E-19)



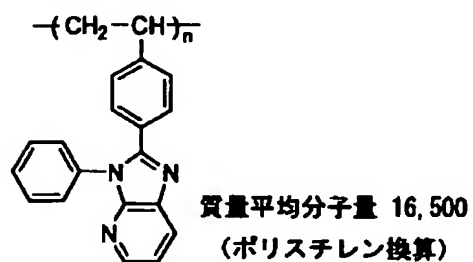
(E-20)



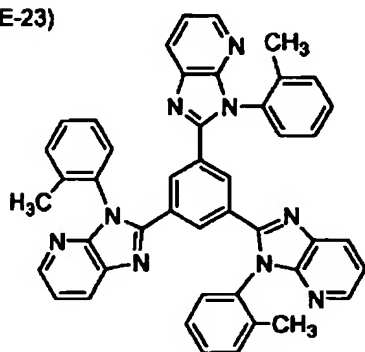
(E-21)



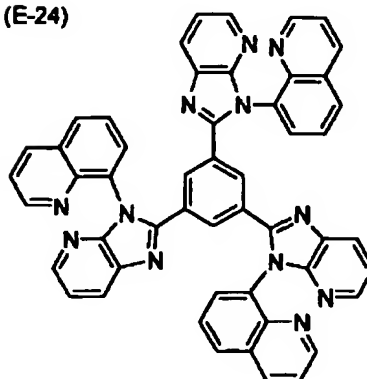
(E-22)



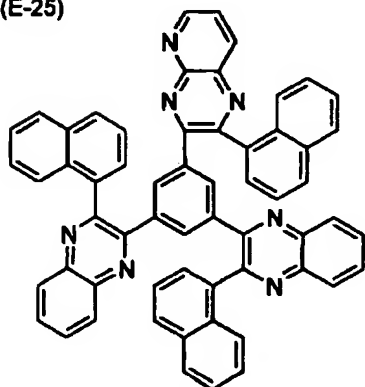
(E-23)



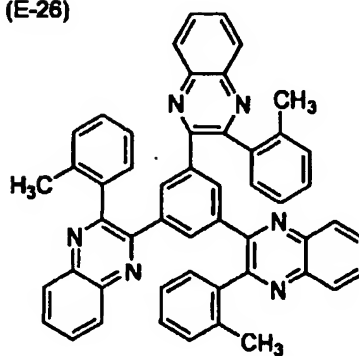
(E-24)



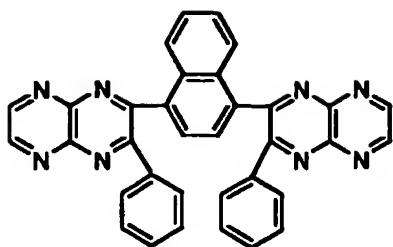
(E-25)



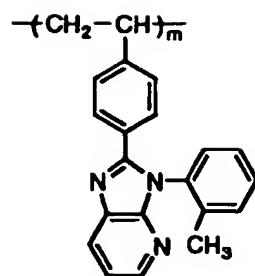
(E-26)



(E-27)

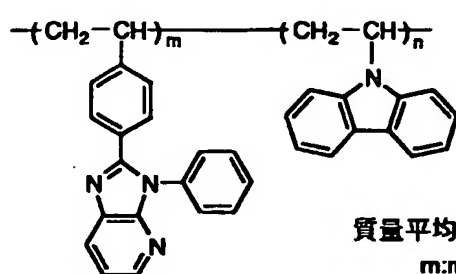


(E-28)

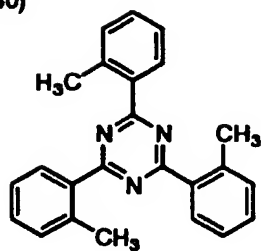


質量平均分子量 21,000(ポリスチレン換算)

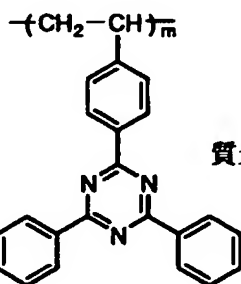
(E-29)

質量平均分子量 17,000(ポリスチレン換算)
m:n=1:1(モル比)

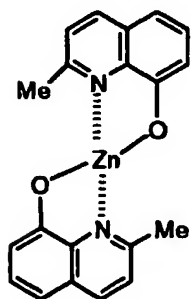
(E-30)



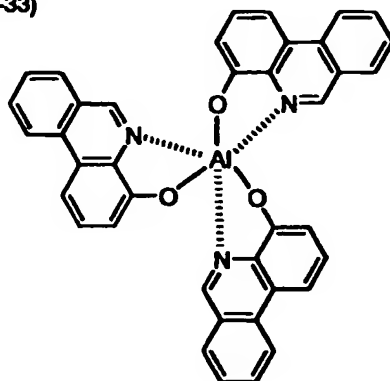
(E-31)

質量平均分子量 74,000
(ポリスチレン換算)

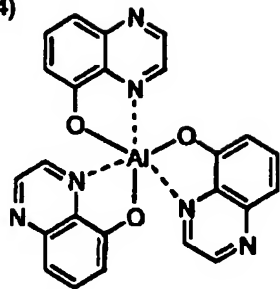
(E-32)



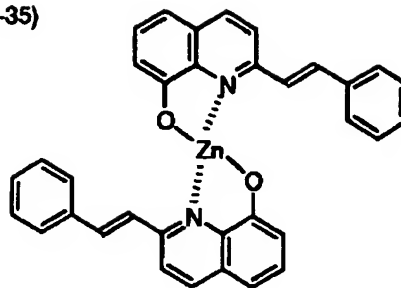
(E-33)



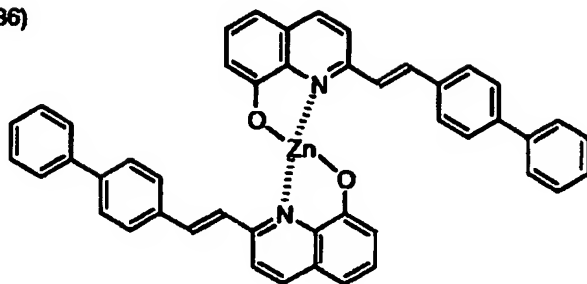
(E-34)



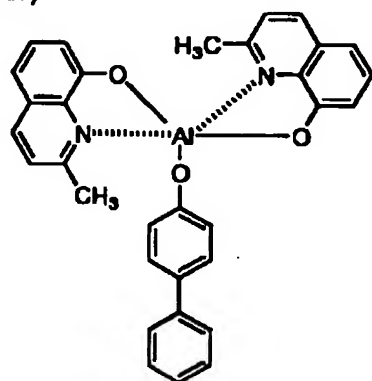
(E-35)



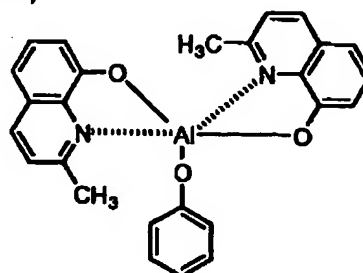
(E-36)



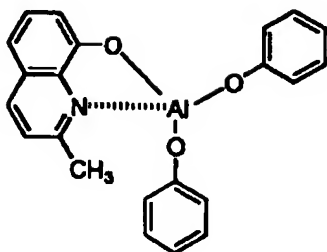
(E-37)



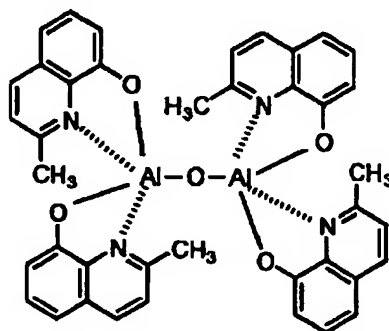
(E-38)



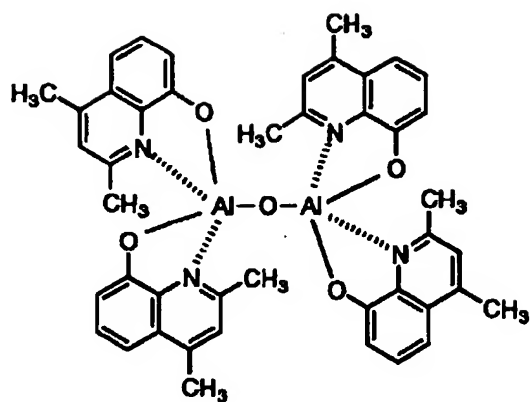
(E-39)



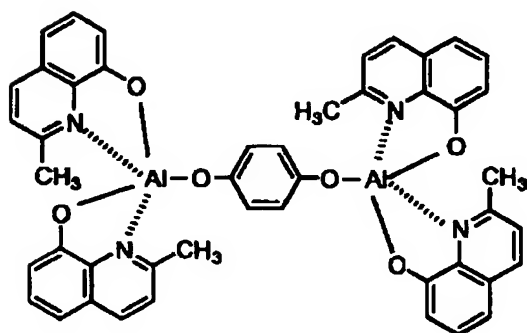
(E-40)



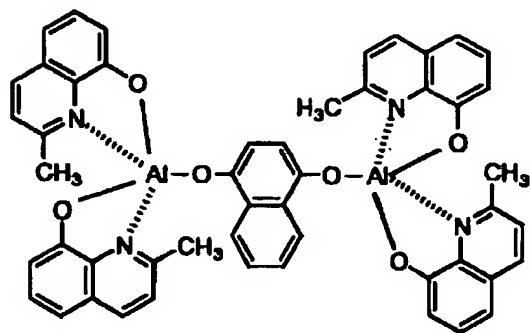
(E-41)



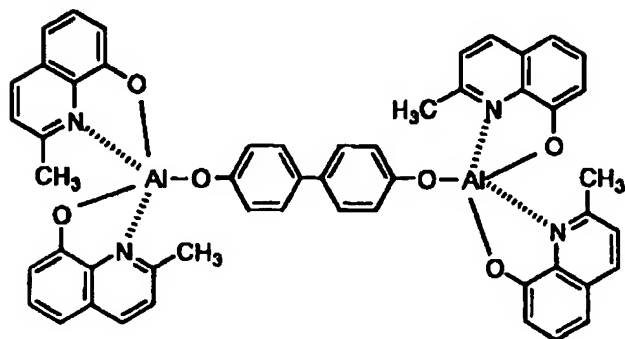
(E-42)

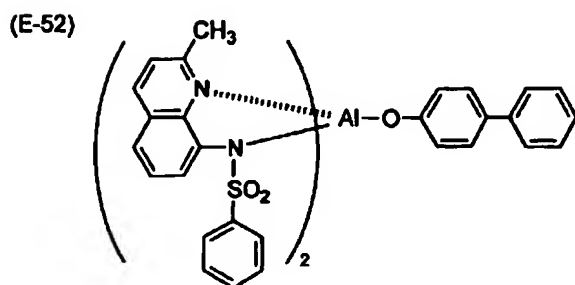
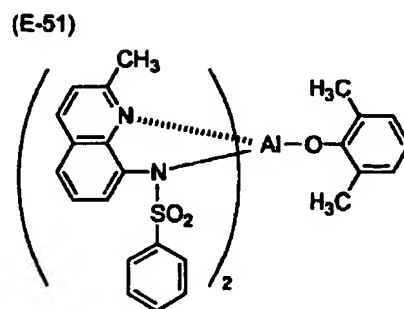
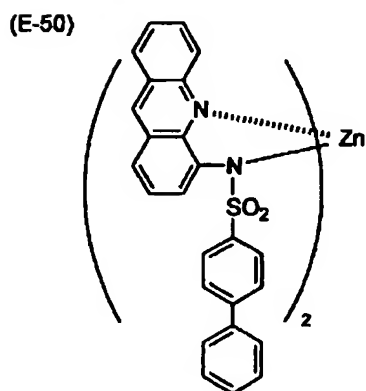
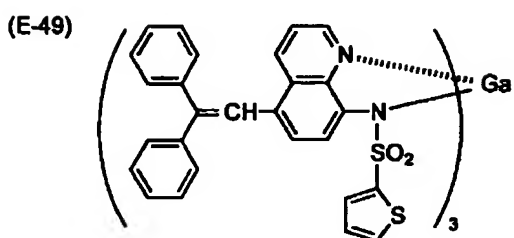
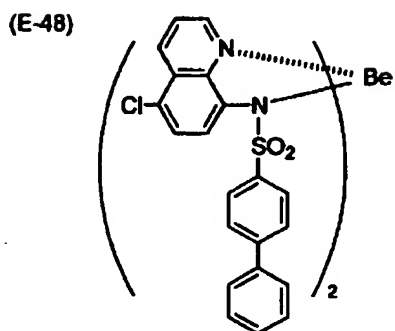
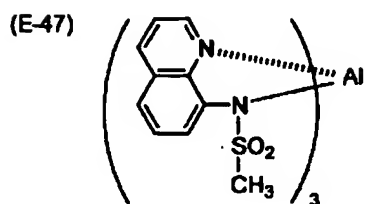
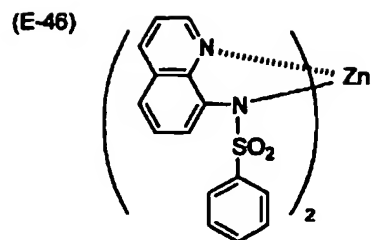
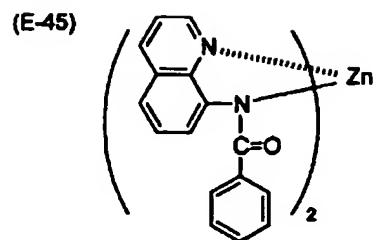


(E-43)

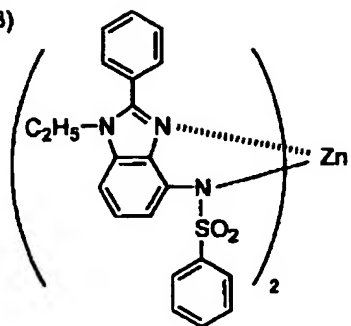


(E-44)

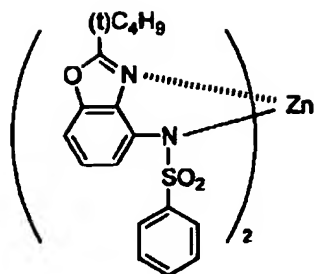




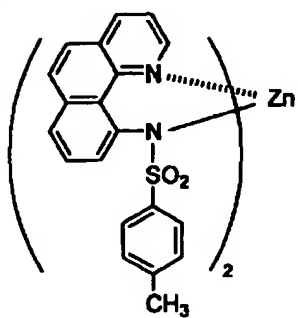
(E-53)



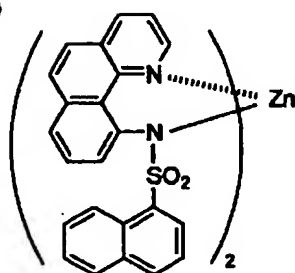
(E-54)



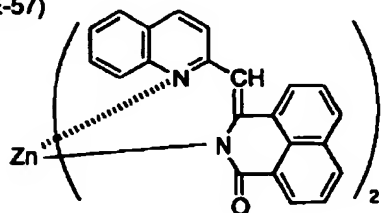
(E-55)



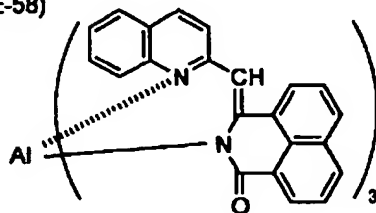
(E-56)



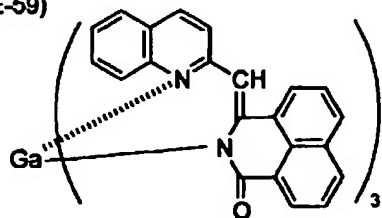
(E-57)



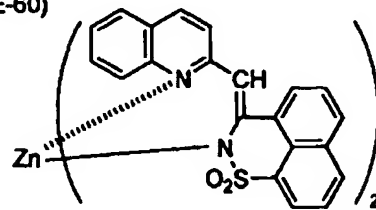
(E-58)



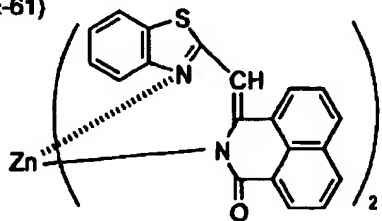
(E-59)



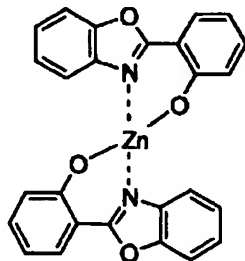
(E-60)



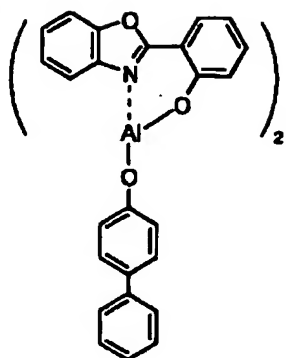
(E-61)



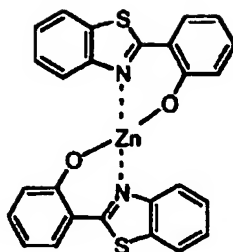
(E-62)



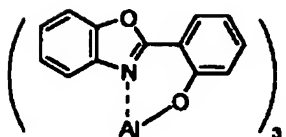
(E-63)



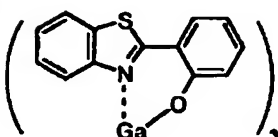
(E-64)



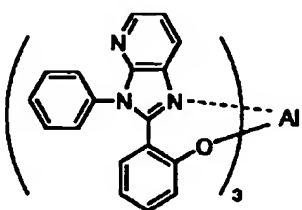
(E-65)



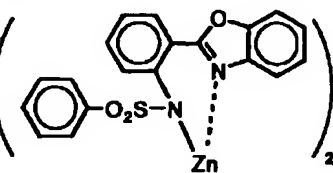
(E-66)



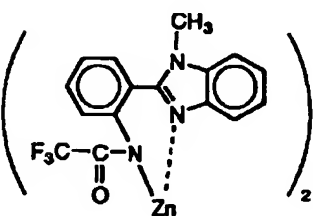
(E-67)



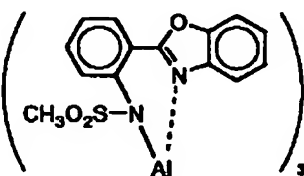
(E-68)



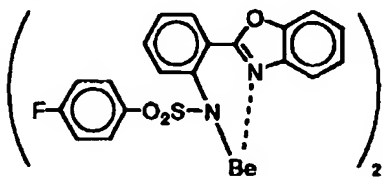
(E-69)



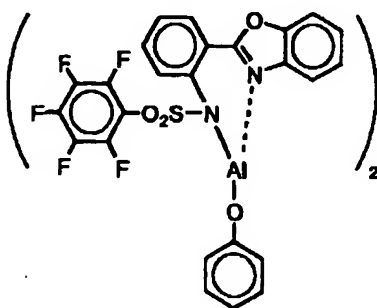
(E-70)



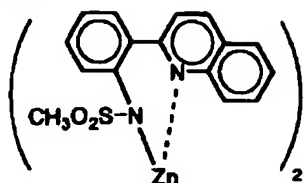
(E-71)



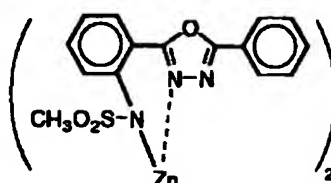
(E-72)



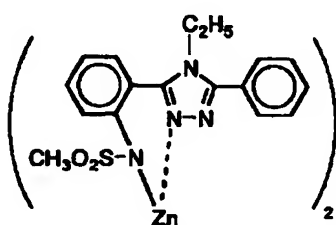
(E-73)



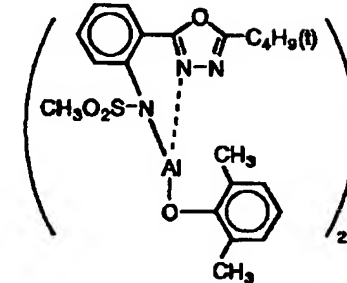
(E-74)



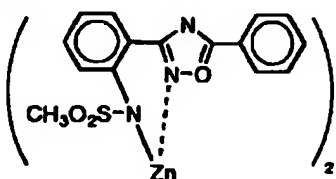
(E-75)



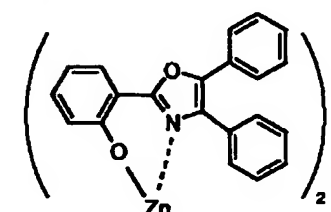
(E-76)



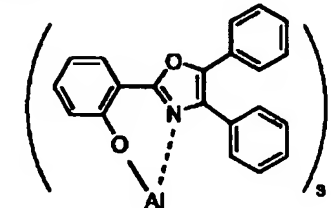
(E-77)



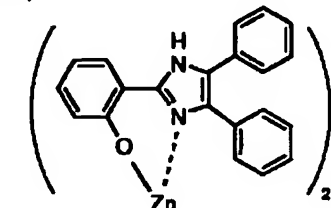
(E-78)



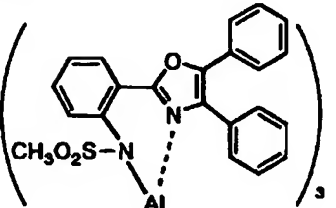
(E-79)



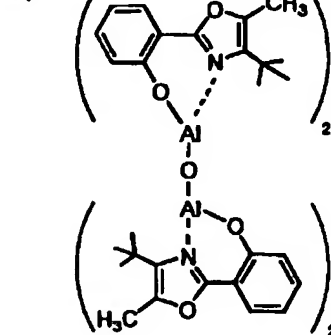
(E-80)



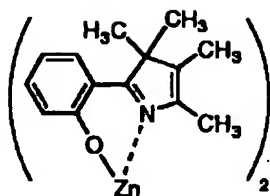
(E-81)



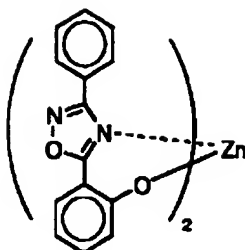
(E-82)



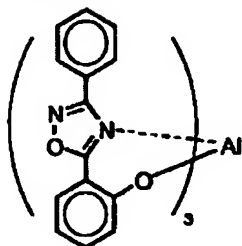
(E-83)



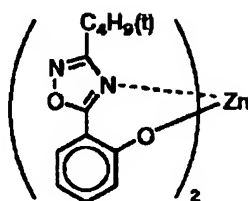
(E-84)



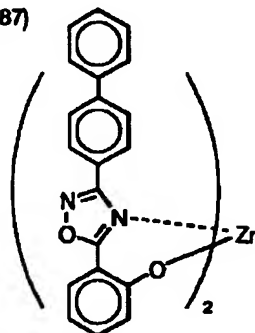
(E-85)



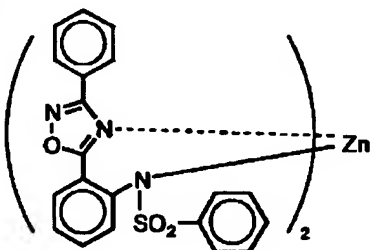
(E-86)



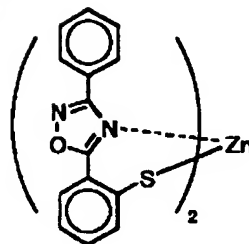
(E-87)



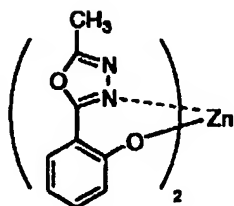
(E-88)



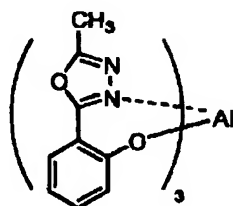
(E-89)



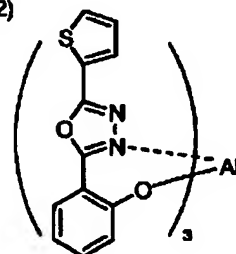
(E-90)



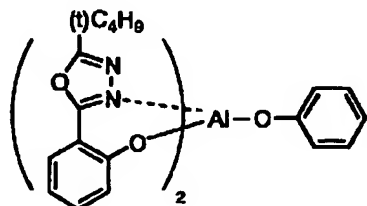
(E-91)



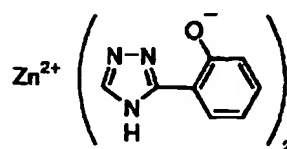
(E-92)



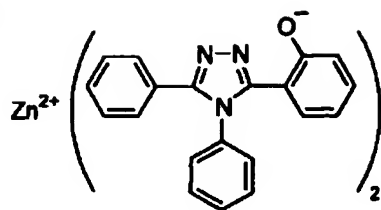
(E-93)



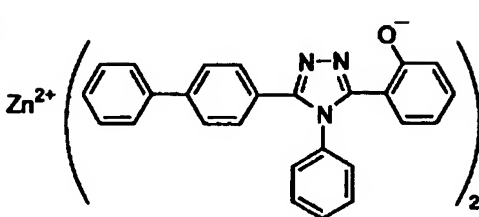
(E-94)



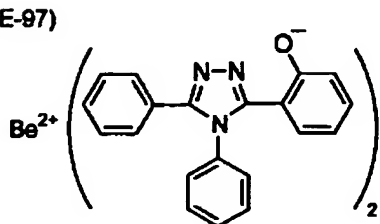
(E-95)



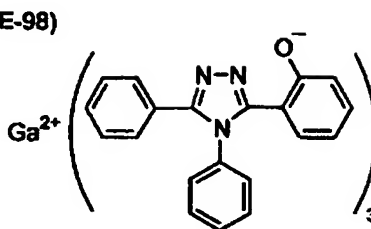
(E-96)



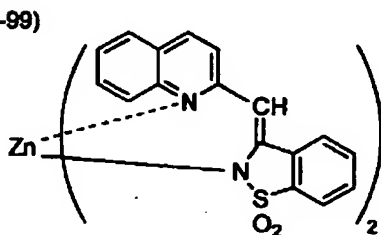
(E-97)



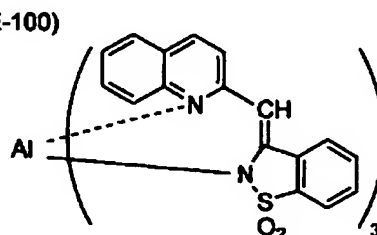
(E-98)



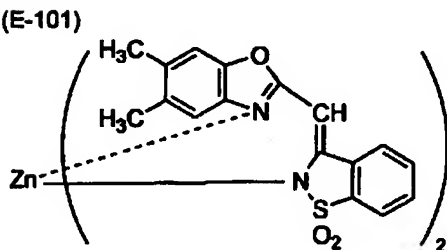
(E-99)



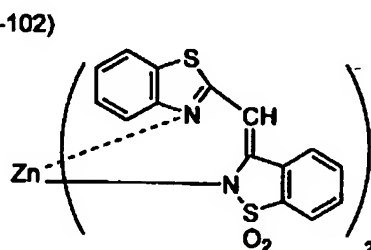
(E-100)



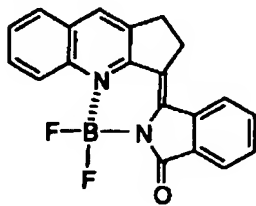
(E-101)



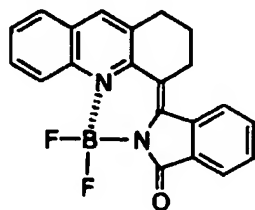
(E-102)



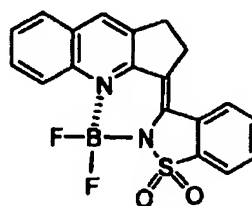
(E-103)



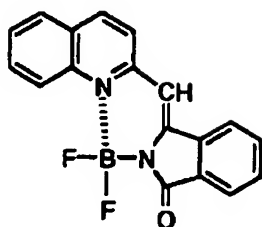
(E-104)



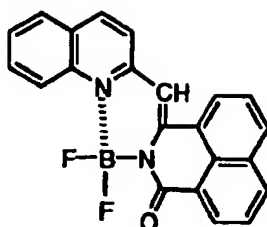
(E-105)



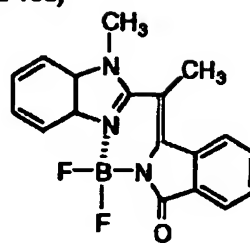
(E-106)



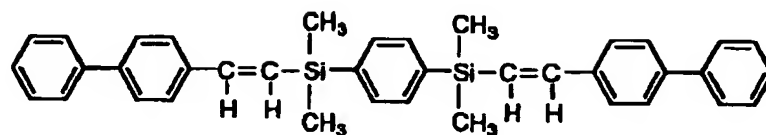
(E-107)



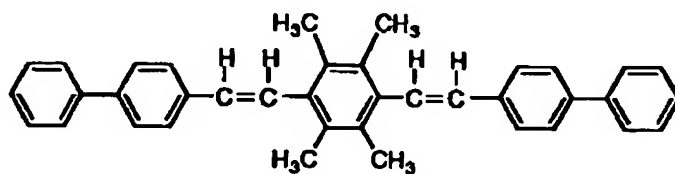
(E-108)



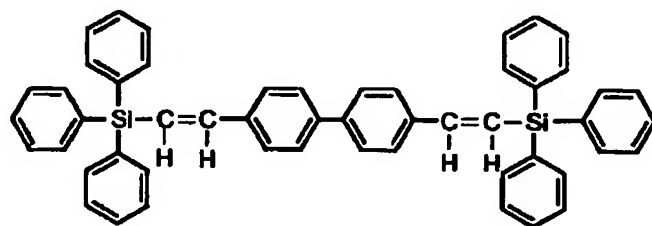
(E-109)



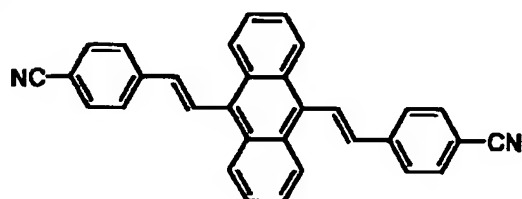
(E-110)



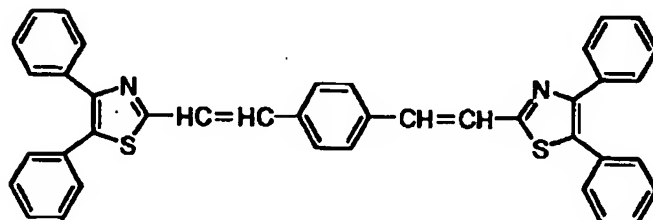
(E-111)



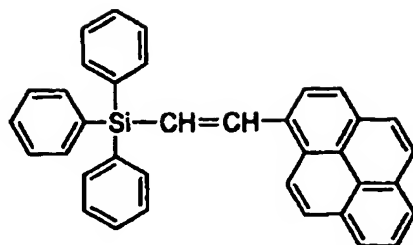
(E-112)



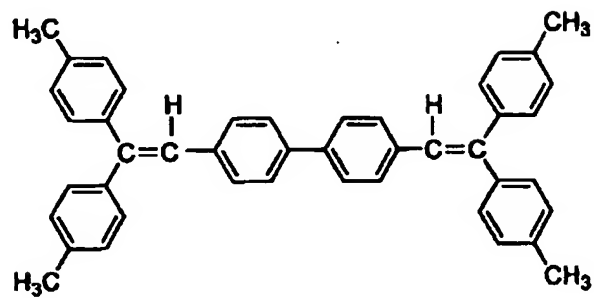
(E-113)



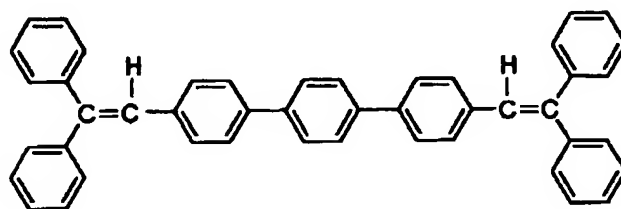
(E-114)



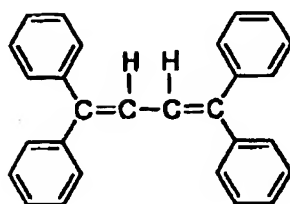
(E-115)



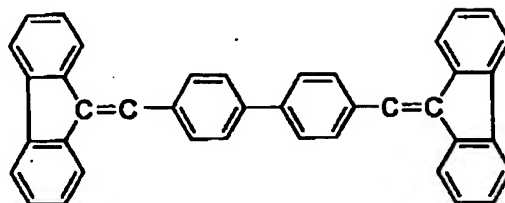
(E-116)



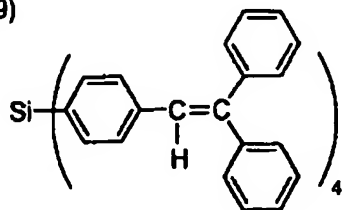
(E-117)



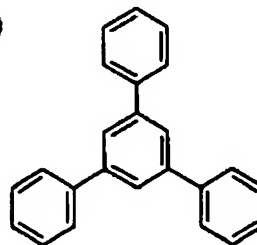
(E-118)



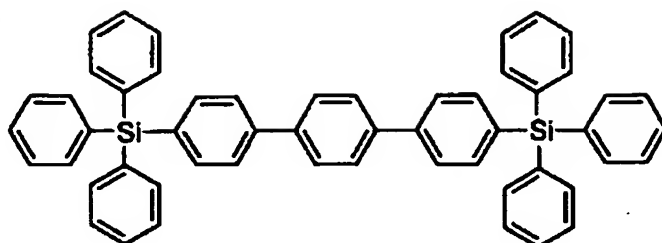
(E-119)



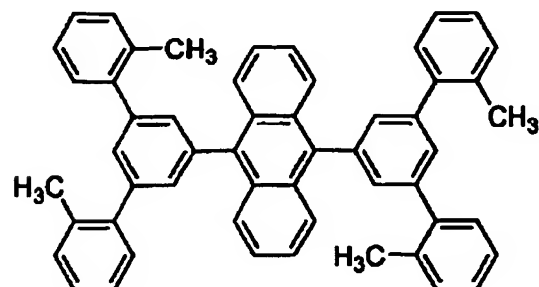
(E-120)



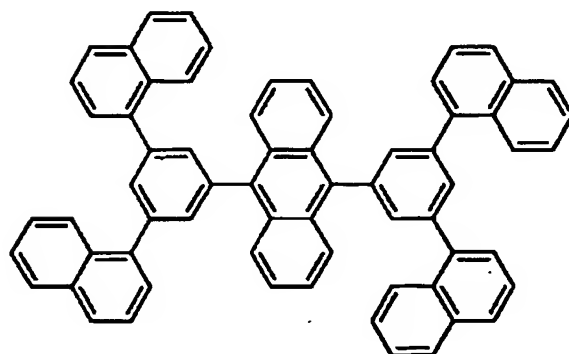
(E-121)



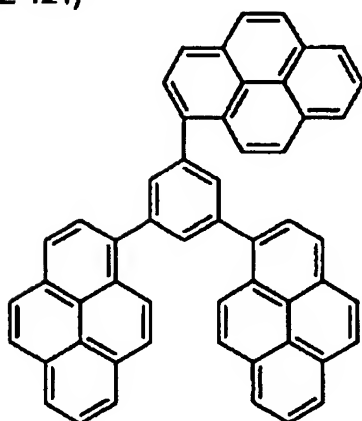
(E-122)



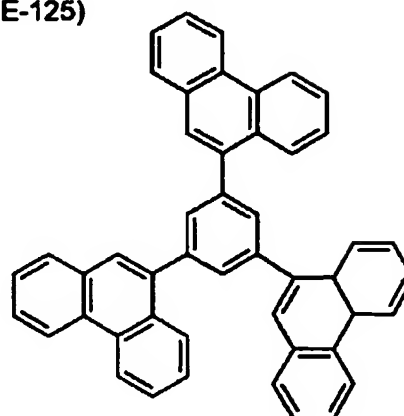
(E-123)



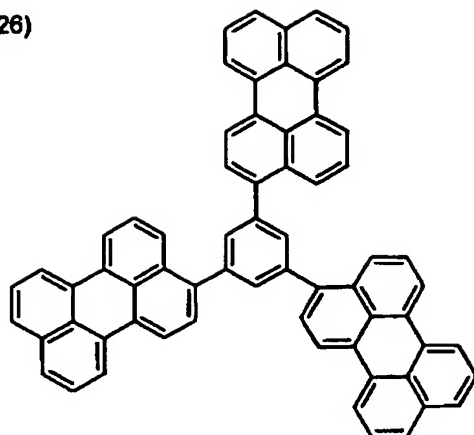
(E-124)



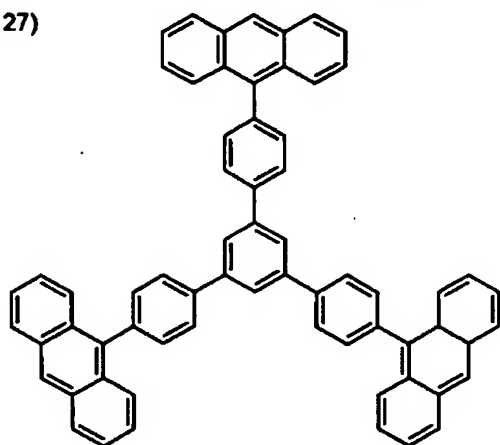
(E-125)



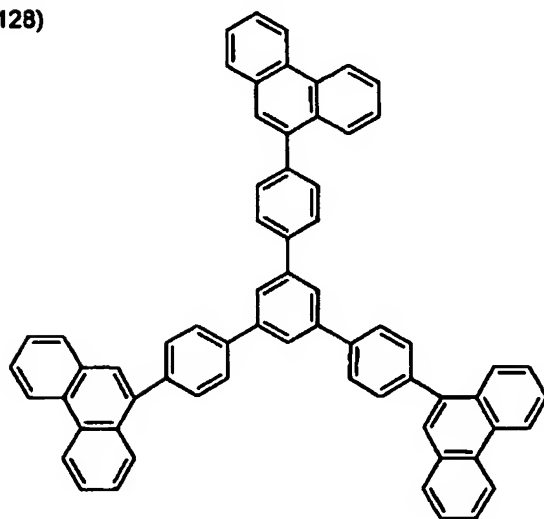
(E-126)



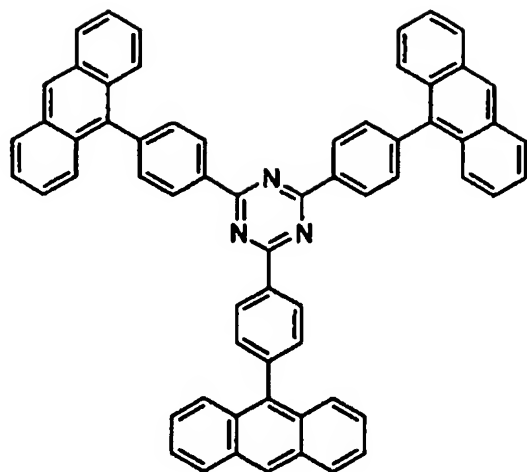
(E-127)



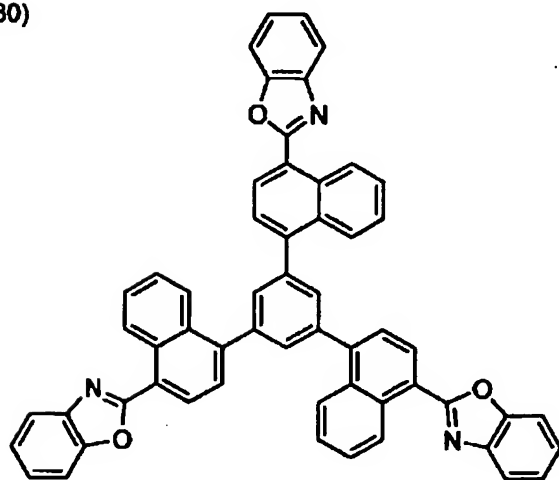
(E-128)



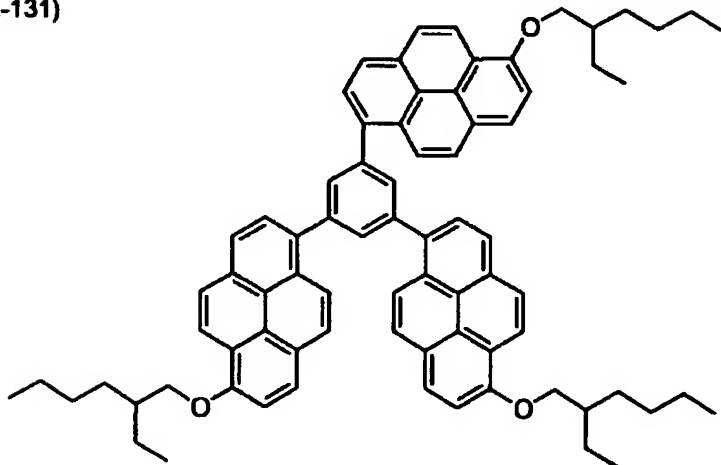
(E-129)



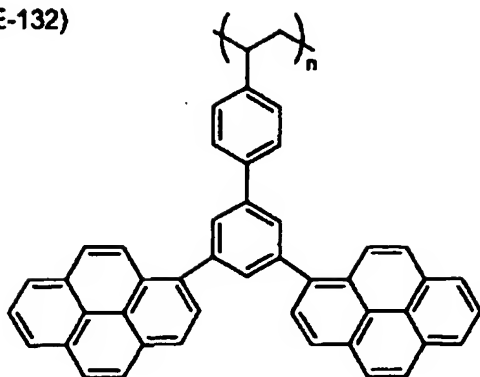
(E-130)



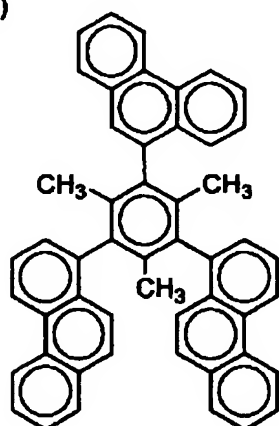
(E-131)



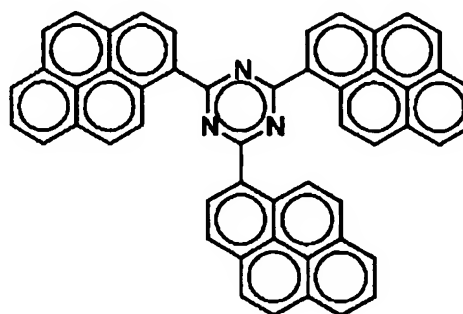
(E-132)

ポリスチレン換算分子量 $M_w=4200$

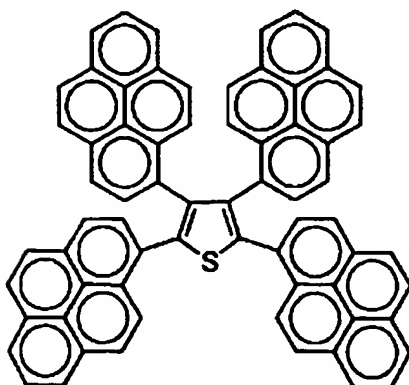
(E-133)



(E-134)



(E-135)



次にホスト材料について説明する。本発明の一般式（I）で表される化合物は一般に緑色領域に吸収を持つことから、ホスト材料からのエネルギー移動により高効率発光させるためにはホスト材料の発光スペクトルが吸収スペクトルとマッチングすることが必要であり、本発明で用いられるホスト材料は一般式（I）で

表される化合物を含有しない場合は一般に緑色発光するものである。該ホスト材料は好ましくはトリアリールアミン化合物、スチリル化合物、芳香族多環縮環化合物もしくは有機金属錯体であり、さらに好ましくは8-キノリノール誘導体の金属錯体であり、特に好ましくはAlq（トリス（8-ヒドロキシキノリナト）アルミニウム）である。

次に、本発明の一般式（I）で表される化合物を含有するEL素子に関して説明する。本発明の一般式（I）化合物を含有するEL素子の有機層の形成方法は、特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法、インクジェット法、印刷法、転写法などの方法が用いられ、特性面、製造面を考えると抵抗加熱蒸着、コーティング法が好ましい。

本発明の発光素子は、陽極、陰極の一对の電極間に発光層、もしくは発光層を含む複数の有機化合物薄膜を形成した素子であり、発光層のほか正孔注入層、正孔輸送層、電子注入層、電子輸送層、保護層などを有してもよく、またこれらの各層はそれぞれ他の機能を備えたものであっても良い。各層の形成にはそれぞれ種々の材料を用いることができる。

陽極は正孔注入層、正孔輸送層、発光層などに正孔を供給するものであり、金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物などを用いることができ、好ましくは仕事関数が4 eV以上の材料である。具体例としては酸化スズ、酸化亜鉛、酸化インジウム、酸化インジウムスズ（ITO）などの導電性金属酸化物、あるいは金、銀、クロム、ニッケル等の金属、さらにこれらの金属と導電性金属酸化物との混合物、または積層物、ヨウ化銅、留化銅などの無機導電性物質、ポリアニリン、ポリチオフェン、ポリピロールなどの有機導電性材料、およびこれらとITOとの積層物などが挙げられ、好ましくは、導電性金属酸化物であり、特に、生産性、高伝導性、透明性などの観点からITOが好ましい。陽極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm～1 μmであり、更に好ましくは100 nm～500 nmである。

陽極は通常、ソーダライムガラス、無アルカリガラス、透明樹脂基板などの上

に層形成したものが用いられる。ガラスを用いる場合、その材質については、ガラスからの溶出イオンを少なくするため、無アルカリガラスを用いることが好ましい。また、ソーダライムガラスを用いる場合、シリカなどのバリアコートを施したものを使用することが好ましい。基板の厚みは機械的強度を保つのに十分な厚みであれば特に制限はないが、ガラスを用いる場合には、通常0.2 mm以上、好ましくは0.7 mm以上のものを用いる。

陽極の作製には材料によって種々の方法が用いられるが、例えばITOの場合、電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、化学反応法（ソルゲル法など）、ITOの分散物の塗布などの方法で膜形成される。

陽極は洗浄その他の処理により、素子の駆動電圧を下げたり、発光効率を高めることも可能である。例えばITOの場合、UV-オゾン処理、プラズマ処理などが効果的である。

陰極は電子注入層、電子輸送層、発光層などに電子を供給するものであり、電子注入層、電子輸送層、発光層などの陰極と隣接する層との密着性やイオン化ポテンシャル、安定性などを考慮して選ばれる。陰極の材料としては金属、合金、金属酸化物、電気伝導性化合物、またはこれらの混合物を用いることができる。具体例としてはアルカリ金属（例えばLi、Na、K、Csなど）またはそのフッ化物、その酸化物、アルカリ土類金属（例えばMg、Caなど）またはそのフッ化物、その酸化物、金、銀、鉛、アルミニウム、ナトリウム-カリウム合金、またはそれらの混合金属、リチウム-アルミニウム合金、またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金、またはそれらの混合金属、インジウム、イッテルビウムなどの希土類金属が挙げられる。好ましくは仕事関数が4 eV以下の材料であり、より好ましくはアルミニウム、リチウム-アルミニウム合金、またはそれらの混合金属、マグネシウム-銀合金、またはそれらの混合金属などである。陰極の膜厚は材料により適宜選択可能であるが、通常10 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは50 nm～1 μmであり、更に好ましくは100 nm～1 μmである。

陰極の作製には電子ビーム法、スパッタリング法、抵抗加熱蒸着法、コーティング法などの方法が用いられ、金属を単体で蒸着することも、二成分以上を同時

に蒸着することもできる。さらに、複数の金属を同時に蒸着して合金電極を形成することも可能であり、またあらかじめ調整した合金を蒸着させても良い。

陽極および陰極のシート抵抗は低い方が好ましく、数百 Ω 以下が好ましい。

発光層の材料は、少なくとも一つの本発明の一般式 (I) で表される化合物を含有し、本発明の一般式 (I) で表される化合物を2種以上併用しても良い。また、本発明の一般式 (I) で表される化合物の他の発光材料を併用してもよく、電界印加時に陽極または正孔注入層、正孔輸送層から正孔を注入することができると共に陰極または電子注入層、電子輸送層から電子を注入することができる機能や、注入された電荷を移動させる機能、正孔と電子の再結合の場を提供して発光させる機能を有する層を形成することができるものであればいずれでも良い。発光層に用いる化合物としては励起一重項から発光するもの、励起三重項から発光するもののいずれでもよく、例えば本発明の化合物の他、ベンゾオキサゾール、ベンゾイミダゾール、ベンゾチアゾール、スチリルベンゼン、ポリフェニル、ジフェニルブタジエン、テトラフェニルブタジエン、ナフタルイミド、クマリン、ペリレン、ペリノン、オキサジアゾール、アルダジン、ピラリジン、シクロペンタジエン、ビススチリルアントラセン、キナクリドン、ピロロピリジン、チアジアゾロピリジン、スチリルアミン、芳香族ジメチリディン化合物、8-キノリノールの金属錯体、有機金属錯体や希土類錯体に代表される各種金属錯体や上記の誘導体、ポリチオフェン、ポリフェニレン、ポリフェニレンビニレンなどのポリマー化合物などが挙げられる。発光層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm \sim 5 μ mの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm \sim 1 μ mであり、更に好ましくは10 nm \sim 500 nmである。

発光層の形成方法は特に限定されるものではないが、抵抗加熱蒸着、電子ビーム、スパッタリング、分子積層法、コーティング法（スピンコート法、キャスト法、ディップ法など）、LB法、インクジェット法、印刷法、転写法などの方法が用いられ、好ましくは抵抗加熱蒸着法、コーティング法である。

正孔注入層、正孔輸送層の材料は、陽極から正孔を注入する機能、正孔を輸送する機能、陰極から注入された電子を障壁する機能のいずれかを有しているものであれば良い。その具体例としては、カルバゾール、イミダゾール、トリアゾー

ル、オキサゾール、オキサジアゾール、ポリアリーールアルカン、ピラゾリン、ピラゾロン、フェニレンジアミン、アリーールアミン、アミノ置換カルコン、スチリルアントラセン、フルオレノン、ヒドラゾン、スチルベン、シラザン、芳香族第三級アミン化合物、スチリルアミン、芳香族ジメチリデン化合物、ポルフィリン系化合物、ポリシラン系化合物、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、アニリン系共重合体、チオフェンオリゴマーおよびポリマー、ポリチオフェンなどの導電性高分子オリゴマーおよびポリマー、カーボン膜や上記の誘導体などが挙げられる。正孔注入層、正孔輸送層の膜厚は材質により特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。正孔注入層、正孔輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であっても良いし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であっても良い。

正孔注入層、正孔輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、インクジェット法、印刷法、転写法、前記正孔注入材料、正孔輸送材料を溶媒に溶解、または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）が用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、ポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンオキシド、ポリブタジエン、ポリ（N-ビニルカルバゾール）、炭化水素樹脂、ケトン樹脂、フェノキシ樹脂、ポリアミド、エチルセルローズ、酢酸ビニル、ABS樹脂、ポリウレタン、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などが挙げられる。

また、本発明に用いられる、発光層と陰極の間に存在する有機膜の膜厚としては、特に限定されるものではないが、0.1 nm～100 nmであることが好ましく、より好ましくは2 nm～50 nmであり、更に5 nm～40 nmであることが好ましい。この有機膜の形成方法としては、特に限定されるものではないが、真空蒸着法やLB法、インクジェット法、印刷法、転写法、前記正孔注入材料、正孔輸送材料を溶媒に溶解、または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）等が用いられる。

電子注入層、電子輸送層の材料は、陰極から電子を注入する機能、電子を輸送する機能、陽極から注入され得た正孔を障壁する機能のいずれかを有しているものであれば良い。その具体例としては、トリアゾール、トリアジン、オキサゾール、オキサジアゾール、フルオレノン、アントラキノジメタン、アントロン、ジフェニルキノン、チオピランジオキシド、カルボジイミド、フルオレニリデンメタン、ジスチリルピラジン、ナフタレンベリレンなどの芳香環テトラカルボン酸無水物、フタロシアニン、8-キノリノール誘導体の金属錯体やメタルフタロシアニン、ベンゾオキサゾールやベンゾチアゾールを配位子とする金属錯体に代表される各種金属錯体や上記の誘導体などが挙げられる。電子注入層、電子輸送層の膜厚は特に限定されるものではないが、通常1 nm～5 μmの範囲のものが好ましく、より好ましくは5 nm～1 μmであり、更に好ましくは10 nm～500 nmである。電子注入層、電子輸送層は上述した材料の1種または2種以上からなる単層構造であっても良いし、同一組成または異種組成の複数層からなる多層構造であっても良い。

電子注入層、電子輸送層の形成方法としては、真空蒸着法やLB法、インクジェット法、印刷法、転写法、前記電子注入材料、電子輸送材料を溶媒に溶解、または分散させてコーティングする方法（スピンコート法、キャスト法、ディップコート法など）が用いられる。コーティング法の場合、樹脂成分と共に溶解または分散することができ、樹脂成分としては例えば、正孔注入・輸送層の場合に例示したものが適用できる。

保護層の材料としては水分や酸素などの素子劣化を促進するものが素子内に入る事を抑止する機能を有しているものであれば良い。その具体例としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al、Ti、Niなどの金属、MgO、SiO、SiO₂、Al₂O₃、GeO、NiO、CaO、BaO、Fe₂O₃、Y₂O₃、TiO₂などの金属酸化物、MgF₂、LiF、AlF₃、CaF₂などの金属フッ化物、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチルメタクリレート、ポリイミド、ポリウレア、ポリテトラフルオロエチレン、ポリクロロトリフルオロエチレン、ポリジクロロジフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレンとジクロロジフルオロエチレンの共重合体、テトラフルオロエチレンと少なくとも1種の

コモノマーを含むモノマー混合物を共重合させて得られる共重合体、共重合主鎖に環状構造を有する含フッ素共重合体、吸水率1%以上の吸水性物質、吸水率0.1%以下の防湿性物質などが挙げられる。

保護層の形成方法についても特に限定はなく、例えば真空蒸着法、スパッタリング法、反応性スパッタリング法、MBE（分子線エビタキシー）法、クラスターイオンビーム法、イオンプレーティング法、プラズマ重合法（高周波励起イオンプレーティング法）、プラズマCVD法、レーザーCVD法、熱CVD法、ガスソースCVD法、コーティング法、インクジェット法、印刷法、転写法を適用することができる。

実施例

以下に本発明の実施例および比較例を例示して説明するが、本発明はこれらの例により限定されるものではない。

比較例1.

25mm×25mm×0.7mmのガラス基板上にITOを150nmの厚さで製膜したもの（東京三容真空（株）製）を透明支持基板とした。この透明支持基板をエッチング、洗浄後、蒸着装置に入れ、TPD（N，N'-ジフェニル-N，N'-ジ（m-トリル）-ベンジジン）を40nm蒸着し、この上に本発明化合物（D-1）及びAlq（トリス（8-ヒドロキシキノリナト）アルミニウム）をそれぞれ蒸着速度0.004nm/秒、0.4nm/秒で膜厚が60nmとなるように $10^{-3} \sim 10^{-4}$ Paの真空中で、基板温度室温の条件下、共蒸着した。さらに有機薄膜上にバターニングしたマスク（発光面積が4mm×5mmとなる）を装着し、マグネシウム：銀=10：1を250nm共蒸着した後、銀250nmを蒸着し、引き続き素子を封止しEL素子を作製した（素子No-101）。

比較例2.

比較例1と同様にITO基板をエッチング、洗浄後、TPD約40nm蒸着した後、本発明化合物（D-1）及びAlq（トリス（8-ヒドロキシキノリナト）アルミニウム）をそれぞれ蒸着速度0.004nm/秒、0.4nm/秒で膜

厚が40 nmになるように共蒸着し、さらに第三層目としてAlqを単独で20 nm蒸着し、次いで比較例1と同様に陰極を蒸着し、引き続き素子を封止し、EL素子を作製した（素子No—102）。

実施例1.

比較例1と同様にITO基板をエッチング、洗浄後、TPD約40 nm蒸着した後、本発明化合物（D—1）及びAlq（トリス（8—ヒドロキシキノリナト）アルミニウム）をそれぞれ蒸着速度0.004 nm/秒、0.4 nm/秒で膜厚が40 nmになるように共蒸着し、さらに第三層目として本発明化合物（E—16）を単独で20 nm蒸着し、次いで比較例1と同様に陰極を蒸着し、引き続き素子を封止し、EL素子を作製した（素子No—103）。さらに、発光材料を表1に記載した化合物に変更し、同様の素子を作成した（素子No—104～106）。

次に以下のようにして各素子を評価した。結果を表1に示した。

・発光最高輝度および発光波長

有機薄膜上に東陽テクニカ製ソースメジャーユニット2400を用いて、直流定電流をEL素子に印加し、比較例および本発明の素子を発光させ、その輝度をトプコン社の輝度計BM—8にて測定比較した。発光波長は、スペクトルアナライザー（PMA—11；浜松ホトニクス社製）によって測定した。

・発光パルスの発光時間（発光パルス幅）の温度依存性

素子の温度を15℃にして10 Vで10 nsの間欠のパルス駆動を与え発光パルスの1パルスの発光時間を測定した。また、次に素子温度を55℃にして同様に発光パルスの1パルスの発光時間を測定した。発光パルスの発光時間（発光パルス幅）の温度依存性を下記式により算出される値で評価した。この値が1に近い程温度依存性が小さい。

$$\text{温度依存性} = 15^\circ\text{Cでの発光時間} / 55^\circ\text{Cでの発光時間}$$

表1

| 素子 No. | 発光材料 | 最高輝度 (cd/m ²) | 発光波長 EL max(nm) | 発光パルス幅 の温度依存性 |
|--------|------|------------------------------|--------------------|------------------|
| 101 | D-1 | 2000 | 616 | 0.83 |
| 102 | D-1 | 2420 | 614 | 0.82 |
| 103 | D-1 | 4050 | 610 | 0.93 |
| 104 | D-22 | 3500 | 658 | 0.92 |
| 105 | D-27 | 6100 | 603 | 0.93 |
| 106 | D-34 | 3000 | 630 | 0.91 |

以下に比較例1、比較例2、実施例1で用いた化合物を示す。

なお、下記イオン化ポテンシャル (IP) の値は光電子分光装置 (理研計器製 AC-1)、サイクリックボルタンメトリー、および文献値から得られたもの (単位: eV) である。

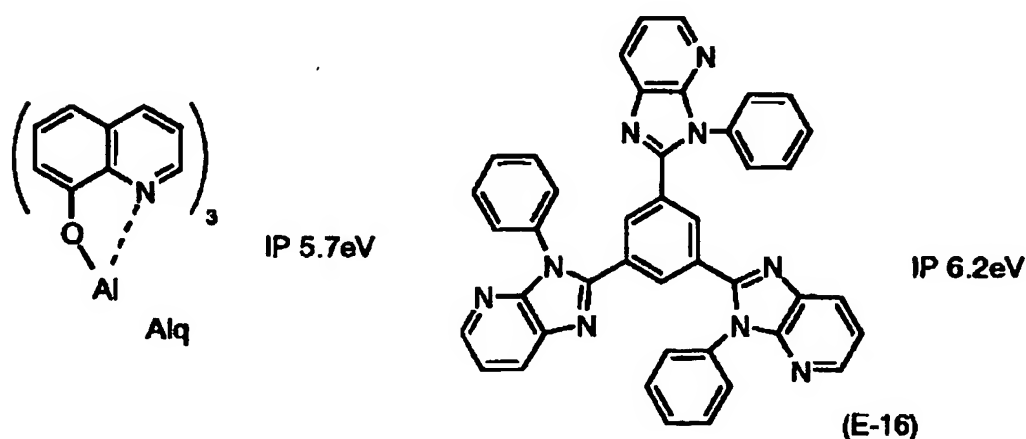


表1の結果から明らかなように、本発明の素子は、高輝度、高効率発光可能であり、発光パルス幅の温度依存性も1に近く、優れる。

実施例2.

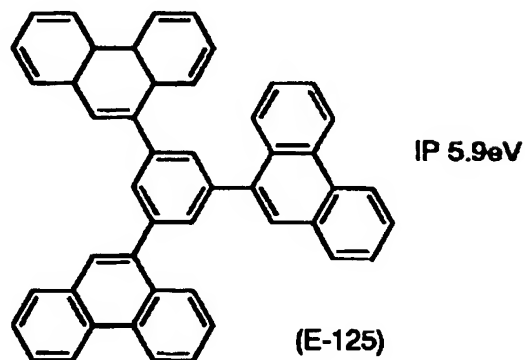
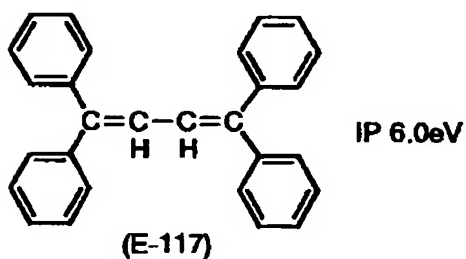
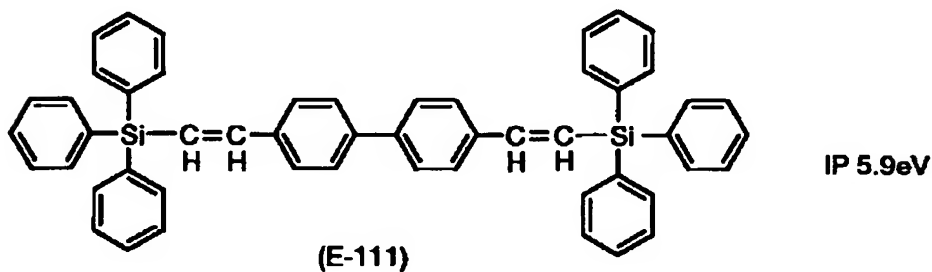
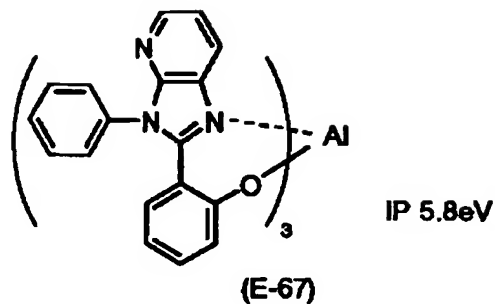
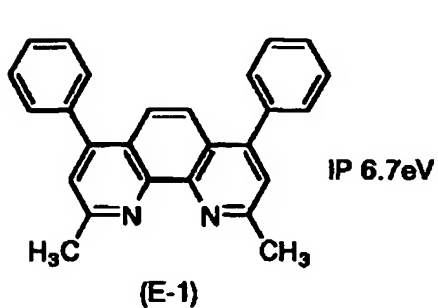
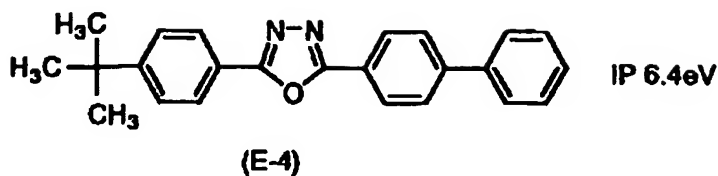
比較例2と同様にITO基板をエッチング、洗浄後、TPD約40nm蒸着した後、本発明化合物(D-1)及びAlq(トリス(8-ヒドロキシキノリナト)アルミニウム)をそれぞれ蒸着速度0.004nm/秒、0.4nm/秒で膜

厚が40 nmになるように共蒸着し、さらに第三層目として表2記載の化合物を単独で5 nm蒸着し、第四層目としてAlqを15 nm蒸着し、次いで実施例1と同様に陰極を蒸着し、引き続き素子を封止し、EL素子を作製した（素子No 201～207）。

表2

| 素子 No. | 第三層化合物 | 発光パルス幅の温度依存性 |
|--------|--------|--------------|
| 201 | E-16 | 0.93 |
| 202 | E-4 | 0.90 |
| 203 | E-1 | 0.91 |
| 204 | E-67 | 0.85 |
| 205 | E-111 | 0.87 |
| 206 | E-117 | 0.89 |
| 207 | E-125 | 0.87 |

以下に実施例2で用いた化合物を示す。



実施例 1 と同様にパルス幅の温度依存性を測定した結果を表 2 に示した。この結果から、本発明の素子は比較例 2（素子 No. 102）と比較して発光パルス幅の温度依存性が改善していることが確認できる。なお、素子 No. 101～106、201～207 の赤色純度はいずれも良好なものであった。

本発明を詳細にまた特定の実施態様を参照して説明したが、本発明の精神と範囲を逸脱することなく様々な変更や修正を加えることができることは当業者にとって明らかである。

本出願は、2001 年 3 月 30 日出願の日本特許出願（特願 2001-101027 号）に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

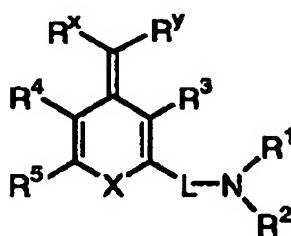
産業上の利用可能性

本発明の発光素子は、パルス駆動時において発光パルス幅の温度依存性が小さく、しかも赤色純度、発光効率および耐久性に優れる。従って、本発明の発光素子は、バックライト、フラットパネルディスプレイ、照明光源、表示素子、電子写真、有機半導体レーザー、記録光源、露光光源、読み取り光源、標識、看板、光通信デバイスなどの分野に好適に用いられる。

請 求 の 範 囲

1. 基板上に設けた一対の電極間に下記一般式 (I) で表される化合物から選択される少なくとも一つの発光材料とホスト材料とを含む発光層を有し、該発光層に接し、該発光層と陰極との間にホスト材料のイオン化ポテンシャルより大きいイオン化ポテンシャルを有する有機膜を有することを特徴とする発光素子。

一般式 (I)



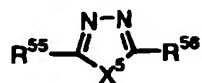
式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 は、同一または異なって、水素原子または置換基を表す。Xは、酸素原子、硫黄原子、 $N-R^{y1}$ を表し、 R^{y1} は水素原子または置換基を表す。Lは、共役結合からなる連結基を表す。 R^x および R^y は、同一または異なって、水素原子または置換基を表し、少なくとも一方は電子吸引性基である。

2. 前記有機膜のイオン化ポテンシャルと、発光層のホスト材料のイオン化ポテンシャルの差は0.01 eV以上2 eV以下であることを特徴とする請求の範囲第1項に記載の発光素子。

3. 前記有機膜のイオン化ポテンシャルは、5.7 eVより大きく7.0 eV以下であることを特徴とする請求の範囲第1項または第2項に記載の発光素子。

4. 前記有機膜が、一般式 (V) ないし (XI) で表される化合物から選択される少なくとも一つの化合物からなることを特徴とする請求の範囲第1項ないし第3項のいずれかに記載の発光素子。

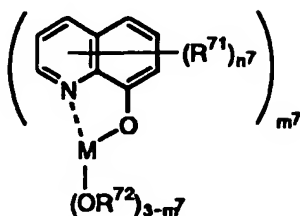
一般式 (V)



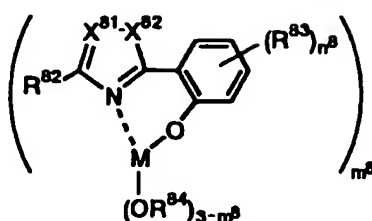
一般式 (VI)



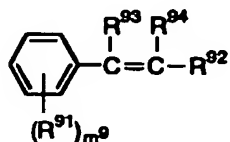
一般式 (VII)



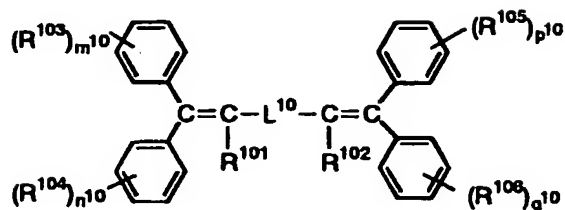
一般式 (VIII)



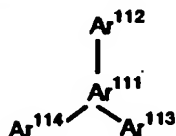
一般式 (IX)



一般式 (X)



一般式 (XI)



一般式 (V) 中、 R^{55} および R^{56} は、同一または異なって、アルキル基、アリール基、ヘテロ環基を表す。 X^5 は、酸素原子、硫黄原子、 $N-R^{Y5}$ を表し、 R^{Y5} は水素原子または置換基を表す。

一般式 (VI) 中、 A は二つ以上のヘテロ原子を含むヘテロ環基を表し、 A で表されるヘテロ環基は同一または異なってもよい。 m^6 は、2 以上の整数を表す。 L^6 は連結基を表す。

一般式 (VII) 中、 R^{71} は置換基を表す。 R^{72} は、水素原子、脂肪族基、アリール基、または芳香族ヘテロ環基を表す。 M は、金属原子を表す。 n^7 は、0 ～ 6 の整数を表す。 m^7 は、2 もしくは 3 を表す。ただし、 $m^7 = 3$ のとき $n^7 \neq 0$ である。

一般式 (VIII) 中、 X^{81} は、窒素原子または $C-R^{81}$ を表す。 X^{82} は、酸素原子、硫黄原子または $N-R^{82}$ を表す。 R^{81} 、 R^{82} 、 R^{83} 、 R^{84} は、同一または異なって、水素原子または置換基を表す。 R^{81} と R^{82} は連結して環を形成しても良い。 R^{84} は、水素原子、アルキル基、アリール基または芳香族ヘテロ環基を表す。 M は、金属原子を表す。 n^8 は、0ないし4の整数を表し、 m^8 は2ないし3を表す。

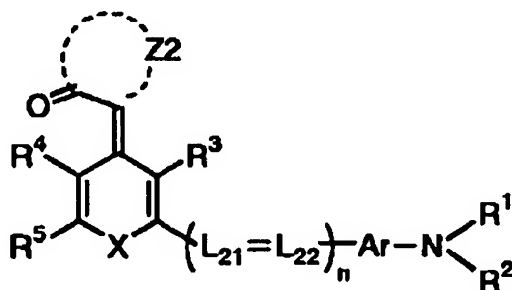
一般式 (IX) 中、 R^{91} は置換基を表す。複数の R^{91} は互いに連結して縮合環を形成しても良い。 R^{92} ないし R^{94} は、同一または異なって、水素原子または置換基を表す。 m^9 は、0ないし5の整数を表す。

一般式 (X) 中、 R^{101} および R^{102} は、同一または異なって、水素原子または置換基を表し、 R^{103} ないし R^{106} は、同一または異なって、置換基を表す。 L^{10} は、連結基を表す。 m^{10} 、 n^{10} 、 p^{10} および q^{10} は、同一または異なって、0ないし5の整数を表す。

一般式 (XI) 中、 Ar^{111} は3価のアリーレン基を表す。 Ar^{112} ないし Ar^{114} は、同一または異なって、アリール基を表す。

5. 一般式 (I) 記載の化合物が一般式 (II) で表される化合物であることを特徴とする請求の範囲第1項ないし第4項のいずれかに記載の発光素子。

一般式 (II)

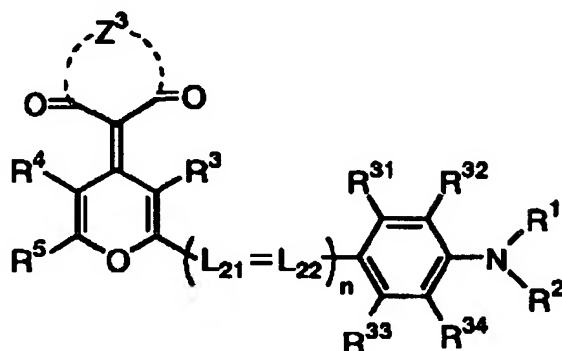


式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 および R^5 は、同一または異なって、水素原子または置換基を表す。 X は、酸素原子、硫黄原子、 $N-R^{Y1}$ を表し、 R^{Y1} は水素原子または置換基を表す。 Z^2 は、5ないし6員環を形成するに必要な原子群を表す。 L_{21} および L_{22} は、同一または異なって、メチン基、置換メチン基または

窒素原子を表す。nは0ないし3の整数を表す。Arはアリーレン基または二価の芳香族ヘテロ環基を表す。

6. 一般式 (II) 記載の化合物が一般式 (III) で表される化合物であることを特徴とする請求の範囲第5項に記載の発光素子。

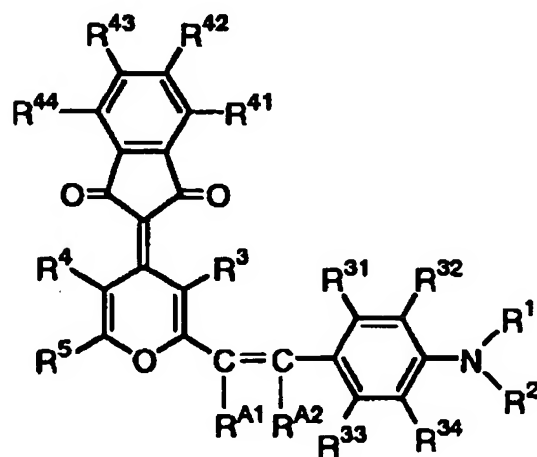
一般式 (III)



式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 及び R^{34} は、同一または異なって、水素原子または置換基を表す。 Z^3 は、5ないし6員環を形成するに必要な原子群を表す。 L_{21} および L_{22} は、同一または異なって、メチン基、置換メチン基または窒素原子を表す。nは0ないし3の整数を表す。

7. 一般式 (III) 記載の化合物が一般式 (IV) で表される化合物であることを特徴とする請求の範囲第6項に記載の発光素子。

一般式 (IV)



式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 R^5 、 R^{31} 、 R^{32} 、 R^{33} 、 R^{34} 、 R^{41} 、 R^{42} 、

R^{43} および R^{44} は、同一または異なって、水素原子または置換基を表す。 R^{A1} および R^{A2} は、同一または異なって、水素原子または置換基を表し、可能な場合には R^{A1} と R^{A2} とが連結して、さらにはその他の置換基と連結して環を形成してもよい。

8. ホスト材料が、アルミニウムキノリン誘導体であることを特徴とする請求の範囲第1項ないし第7項のいずれかに記載の発光素子。

9. 下記一般式(I)ないし(IV)で表される化合物から選択される少なくとも一つの化合物の発光層における含有量が、0.01質量%以上50質量%以下であることを特徴とする請求の範囲第1項ないし第8項のいずれかに記載の発光素子。

10. 下記一般式(V)ないし(XI)で表される化合物から選択される少なくとも一つの化合物の有機膜における含有量が、50質量%以上100質量%以下であることを特徴とする請求の範囲第4項ないし第9項のいずれかに記載の発光素子。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/03101

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl⁷ C09K11/06, H05B33/14, H05B33/22

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl⁷ C09K11/06, H05B33/14, H05B33/22

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

CA (STN), REGISTRY (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|---|-----------------------|
| X Y | JP 11-335661 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 07 December, 1999 (07.12.99), Claims; Par. Nos. [0088], [0090]; example 3 (Family: none) | 1, 5-9 2-4, 10 |
| X Y | JP 11-292875 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 26 October, 1999 (26.10.99), Claims; Par. Nos. [0035], [0042]; example 3 (Family: none) | 1, 5-9 2-4, 10 |
| X Y | JP 2000-351774 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 19 December, 2000 (19.12.00), Claims; Par. Nos. [0042], [0048]; examples 2, 3 (Family: none) | 1, 5-9 2-4, 10 |
| Y | JP 11-329734 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 30 November, 1999 (30.11.99), Claims (Family: none) | 2, 4 |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.
 ☐ See patent family annex.

| | |
|---|--|
| * Special categories of cited documents: | "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention |
| "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance | "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone |
| "E" earlier document but published on or after the international filing date | "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art |
| "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) | "&" document member of the same patent family |
| "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means | |
| "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed | |

Date of the actual completion of the international search
18 June, 2002 (18.06.02)Date of mailing of the international search report
02 July, 2002 (02.07.02)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP02/03101

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|-----------|--|-----------------------|
| Y | JP 2001-60496 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 06 March, 2001 (06.03.01), Claims; Par. Nos. [0040] to [0044] (Family: none) | 3, 4 |
| Y | JP 2000-77185 A (Asahi Chemical Industry Co., Ltd.), 14 March, 2000 (14.03.00), Claims; Par. Nos. [0013] to [0015] (Family: none) | 4 |
| Y | JP 2000-21572 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 21 January, 2000 (21.01.00), Claims; Par. Nos. [0048] to [0065] (Family: none) | 2, 4 |
| Y | JP 2000-133458 A (Asahi Glass Co., Ltd.), 12 May, 2000 (12.05.00), Claims (Family: none) | 4 |
| Y | JP 2000-302754 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 31 January, 2000 (31.01.00), & US 6358634 B1 | 4 |
| Y | US 5518824 A (BASF AG.), 21 May, 1996 (21.05.96), & EP 637899 A1 & DE 4325885 A & JP 7-114987 A & CN 1103230 A | 4 |
| Y | JP 2000-21575 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 21 January, 2000 (21.01.00), & US 6232001 B1 | 4 |
| P, Y | JP 2001-192651 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 17 July, 2001 (17.07.01), Claims (Family: none) | 4 |
| P, Y | JP 2001-85166 A (NEC Corp.), 30 March, 2001 (30.03.01), Claims & DE 10045127 A1 & KR 2001050455 A | 2, 4 |
| P, X | JP 2002-43059 A (NEC Corp.), 08 February, 2002 (08.02.02), (Family: none) | 1-10 |

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C09K11/06, H05B33/14, H05B33/22

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ C09K11/06, H05B33/14, H05B33/22

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CA (STN)、REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
|-----------------|--|-------------------|
| X Y | JP 11-335661 A(富士写真フイルム株式会社)1999.12.07, 特許請求の範囲、【0088】欄、【0090】欄、実施例3(ファミリーなし) | 1, 5-9 2-4, 10 |
| X Y | JP 11-292875 A(富士写真フイルム株式会社)1999.10.26, 特許請求の範囲、【0035】欄、【0042】欄、実施例3(ファミリーなし) | 1, 5-9 2-4, 10 |
| X Y | JP 2000-351774 A(富士写真フイルム株式会社)2000.12.19, 特許請求の範囲、【0042】欄、【0048】欄、実施例2, 3(ファミリーなし) | 1, 5-9 2-4, 10 |

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

18.06.02

国際調査報告の発送日

02.07.02

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

渡辺 陽子

電話番号 03-3581-1101 内線 3483



4V

9279

| C (続き) . 関連すると認められる文献 | | |
|-----------------------|---|------------------|
| 引用文献の カテゴリー* | 引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する 請求の範囲の番号 |
| Y | JP 11-329734 A(三菱化学株式会社)1999. 11. 30、特許請求の範囲(ファミリーなし) | 2, 4 |
| Y | JP 2001-60496 A(富士写真フイルム株式会社)2001. 03. 06、特許請求の範囲, 【0040】 欄～ 【0044】 欄(ファミリーなし) | 3, 4 |
| Y | JP 2000-77185 A(旭化成工業株式会社)2000. 03. 14、特許請求の範囲、 【0013】 欄～ 【0015】 欄(ファミリーなし) | 4 |
| Y | JP 2000-21572 A(三菱化学株式会社)2000. 01. 21、特許請求の範囲、 【0048】 欄～ 【0065】 欄 (ファミリーなし) | 2, 4 |
| Y | JP 2000-133458 A(旭硝子株式会社)2000. 05. 12、特許請求の範囲、(ファミリーなし) | 4 |
| Y | JP 2000-302754 A(富士写真フイルム株式会社)2000. 01. 31&US 6358 634 B1 | 4 |
| Y | US 5518824 A(BASF Aktiengesellschaft)1996. 05. 21&EP 637899 A1 &DE 4325885 A&JP 7-114987 A&CN 1103230 A | 4 |
| Y | JP 2000-21575 A(富士写真フイルム株式会社)2000. 01. 21 &US 6232 001 B1 | 4 |
| P, Y | JP 2001-192651 A(富士写真フイルム株式会社)2001. 07. 17、特許請求の範囲(ファミリーなし) | 4 |
| P, Y | JP 2001-85166 A(日本電気株式会社)2001. 03. 30、特許請求の範囲&DE 10045127 A1&KR 2001050455 A | 2, 4 |
| P, X | JP 2002-43059 A(日本電気株式会社)2002. 02. 08(ファミリーなし) | 1-10 |